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
ニアフィールド長期環境変遷評価
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
一般財団法人電力中央研究所

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、一般財団法人電力中央研究所、公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター及び国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した令和 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（ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発）の事業報告書である。

This report shows the technology developments performed by Radioactive Waste Management Funding and Research Center and Japan Atomic Energy Agency funded by the Ministry of Economy, Trade and Industry of Japan through the project "Project on Research and Development for Validating Safety Assessment of Geological Disposal: Development of the Technology to Evaluate a Long-term Evolution of Near-field Environments" in JFY2023.

目　次

第 1 章　緒言
1.1　本事業の背景と目的 ……1-1
1.2　実施計画 ……1-1
参考文献 ……1-7

第 2 章　ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化
2.1　目的と 5 か年の計画 ……2-1
2.1.1　目的 ……2-1
2.1.2　5 か年の計画 ……2-1
2.2　ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化 ……2-3
2.2.1　緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価 ……2-3
(1) 背景と目的 ……2-3
(2) 実施内容 ……2-4
(3) 成果と今後の課題 ……2-17
2.2.2　炭素鋼－ベントナイトの相互作用 ……2-18
(1) 背景と目的 ……2-18
(2) 実施内容 ……2-18
(3) 成果と今後の課題 ……2-34
2.2.3　セメント－ベントナイトの相互作用 ……2-35
(1) 背景と目的 ……2-35
(2) 実施内容 ……2-36
(3) 成果と今後の課題 ……2-58
2.2.4　セメント変質 ……2-59
(1) 背景と目的 ……2-59
(2) 実施内容 ……2-60
(3) 成果と今後の課題 ……2-113
2.2.5　坑道周辺の環境状態の変遷 ……2-115
(1) 背景と目的 ……2-116
(2) 実施内容 ……2-115
(3) 成果と今後の課題 ……2-127
2.2.6　緩衝材変質 ……2-129
(1) 背景と目的 ……2-129
(2) 実施内容 ……2-129
(3) 成果と今後の課題 ……2-152
2.3　熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの確証 ……2-153
2.3.1　ニアフィールド長期力学解析手法の高度化 ……2-154
(1) 背景と目的 ……2-154

(2) 実施内容 ……2-155
(3) 成果と今後の課題 ……2-167
2.3.2　ニアフィールド長期力学解析コード開発 ……2-168
(1) 背景と目的 ……2-168
(2) 実施内容 ……2-168
(3) 成果と今後の課題 ……2-177
2.3.3　人工バリア性能確認試験の遠心力加速模型実験による長期現象理解と数値解析の高度化 ……2-178
(1) 背景と目的 ……2-178
(2) 実施内容 ……2-179
(3) 成果と今後の課題 ……2-201
2.4　ニアフィールド状態変遷評価技術の統合とニアフィード核種移行評価への反映 ……2-202
参考文献 ……2-208

第 3 章　熱影響評価技術の高度化
3.1　目的と 5 か年の計画 ……3-1
3.1.1　目的 ……3-1
3.1.2　5 か年の計画 ……3-1
3.2　ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析 ……3-5
3.2.1　背景と目的 ……3-5
3.2.2　実施内容 ……3-5
3.2.3　成果と今後の課題 ……3-17
3.3　幌延地下施設での１００℃超条件における原位置試験 ……3-18
3.3.1　背景と目的 ……3-18
3.3.2　実施内容 ……3-18
3.3.3　成果と今後の課題 ……3-45
3.4　１００℃超を含む温度条件における緩衝材特性の評価 ……3-46
3.4.1　熱履歴供試体への浸潤試験 ……3-47
(1) 背景と目的 ……3-47
(2) 実施内容 ……3-47
(3) 成果と今後の課題 ……3-57
3.4.2　熱履歴および高温条件での膨潤圧測定試験 ……3-58
(1) 背景と目的 ……3-58
(2) 実施内容 ……3-58
(3) 成果と今後の課題 ……3-64
3.4.3　熱履歴供試体への透水試験 ……3-66
(1) 背景と目的 ……3-66
(2) 実施内容 ……3-66
(3) 成果と今後の課題 ……3-72

3.4.4　高温条件での変形試験 ……3-73
(1) 背景と目的 ……3-73
(2) 実施内容 ……3-73
(3) 成果と今後の課題 ……3-82
参考文献 ……3-83

第 4 章　ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化
4.1　目的と 5 か年の計画 ……4-1
4.1.1　目的 ……4-1
4.1.2　5 か年の計画 ……4-3
4.2　ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発 ……4-4
4.2.1　背景と目的 ……4-4
4.2.2　代替固化処理技術の対象となる固型化材料の選定 ……4-4
4.2.3　実施内容 ……4-6
4.2.4　成果と今後の課題 ……4-71
4.3　水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化 ……4-76
4.3.1　背景と目的 ……4-76
4.3.2　実施内容 ……4-76
4.3.3　成果と今後の課題 ……4-95
参考文献 ……4-98

第 5 章　人工バリアの閉じ込め機能の高度化
5.1　目的と 5 か年の計画 ……5-1
5.2　廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発 ……5-2
5.2.1　はじめに ……5-2
5.2.2　後充填方式によるセメント系パッケージ内充填材の開発 ……5-3
5.2.3　実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価 ……5-13
5.2.4　異常事象に対する安全性向上に係る検討 ……5-27
5.2.5　表面改質による SCC 対策技術の整備 ……5-53
5.2.6　まとめと今後の課題 ……5-59
5.3　ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化 ……5-60
5.3.1　目的と 5 カ年の計画 ……5-61
5.3.2　溶解フロント近傍の構造の取得 ……5-64
5.3.3　ガラス構造に基づいた BPI ガラスの水和・溶解挙動のモデル化 ……5-68
5.3.4　非調和溶解時に生じる鉛及びヨウ素を含む 2 次鉱物の分析 ……5-73
5.3.5　ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化の令和 5 年度の成果 ……5-76
参考文献 ……5-77

第 6 章　結言
6.1　ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化……6-1
6.2　熱影響評価技術の高度化……6-4
6.3　ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化……6-5
6.4　人工バリアの閉じ込め機能の高度化……6-8
6.5　おわりに……6-10
参考文献……6-12

付録
Appendix I【セメント―ベントナイト相互作用を対象とした化学反応―物質輸送解析の詳細設定】
……付 I-1

図　目　次

第 1 章　緒言
図 1 1　HLW, TRU 処分でのニアフィールドにおける材料配置、現象・材料間相互作用と、本事業での実施項目の関係 ……1-2
図 1 2　時間スケールに対する各実施項目と成果の反映先の関係 ……1-3

第 2 章　ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化
図 2.2 1　自己シール試験装置の概略図 ……2-7
図 2.2 2　自己シール試験装置の外観 ……2-8
図 2.2 3　自己シール試験の手順の概略図（フロー） ……2-9
図 2.2 4　供試体の分割イメージ ……2-10
図 2.2 5　切り出した試料の乾燥密度と含水比の関係 ……2-14
図 2.2 6　供試体全体と切り出した試料における乾燥密度の差 ……2-16
図 2.2 7　試験の概要 ……2-19
図 2.2 8　断面試料写真と模式図 ……2-20
図 2.2 9　試験後の試験片の外観 ……2-22
図 2.2 10　緩衝材 pH の測定方法 ……2-22
図 2.2 11　腐食量の経時変化 ……2-23
図 2.2 12　XRD 測定結果 ……2-24
図 2.2 13　断面試料の光学像と広域元素マッピング像および透過 X 線像 ……2-25
図 2.2 14　断面試料の詳細分析範囲の光学像と詳細元素マッピング像 ……2-25
図 2.2 15　詳細元素マッピング像の湾曲部周辺の拡大図（図 2.2 14 光学像の赤丸の箇所） 2-26
図 2.2 16　低倍率観察による試験片近傍の反射電子像および元素マッピング像（図 2.2 14 の光学像の赤枠の箇所） ……2-26
図 2.2 17　高倍率観察による試験片近傍の反射電子像および元素マッピング像（図 2.2 16 の赤枠 A：湾曲部がない箇所） ……2-27
図 2.2 18　高倍率観察による試験片近傍の反射電子像および元素マッピング像（図 2.2 16 の赤枠 B：湾曲部がある箇所） ……2-27
図 2.2 19　①の TEM 分析結果 ……2-29
図 2.2 20　②の TEM 分析結果 ……2-30
図 2.2 21　③の TEM 分析結果 ……2-31
図 2.2 22　③の拡大部分（図 2.2 21 の赤破線枠部）の TEM 分析結果 ……2-32
図 2.2 23　顕微ラマン分光分析結果（a：分析箇所、b：ラマンスペクトル） ……2-32
図 2.2 24　超長期試験における試験片と緩衝材の界面近傍の状態変遷のイメージ ……2-34
図 2.2 25　接触試験体の構成図 ……2-36
図 2.2 26　半円柱状試料の μ-XCT 画像 ……2-37
図 2.2 27　EPMA の分析結果 ……2-38
図 2.2 28　EPMA の分析結果 ……2-39

図 2.2 29　厚片全体を対象とした透過 X 線像および元素像 ……2-40
図 2.2 30　厚片試料の中央部の透過 X 線像および元素像（Ca, Si） ……2-41
図 2.2 31　ベントナイト側の粉末 XRD 分析結果 ……2-42
図 2.2 32　セメント側の粉末 XRD 分析結果 ……2-43
図 2.2 33　ベントナイト側の μ-XRD 分析結果 ……2-43
図 2.2 34　ベントナイト試料の相対湿度制御下 XRD 分析の結果 ……2-44
図 2.2 35　薄片試料を対象とした SEM-EDS 分析結果 ……2-45
図 2.2 36　薄膜切片の TEM 分析結果 ……2-46
図 2.2 37　HFSC-80℃-4Y および HFSC-50℃3Y のセメント側における元素分布の比較 …2-48
図 2.2 38　解析体系（第 2 次 TRU レポート図 4.4.2.2-5 より） ……2-49
図 2.2 39　セメント-ベントナイト相互作用長期解析における鉱物組成の変化 ……2-50
図 2.2 40　セメント-ベントナイト相互作用長期解析における緩衝材界面部のモンモリロナイト SI とその他鉱物量の時間変遷 ……2-51
図 2.2 41　アナルサイム溶解速度と絶対温度の関係（データは Wilkin and Barnes 2000 より） ……2-52
図 2.2 42　 HFSC-50℃-3Y 試験再現解析の体系 ……2-53
図 2.2 43　HFSC-ベントナイト接触試験（50℃）の再現解析における接触界面付近 3 年目の鉱物組成 ……2-53
図 2.2 44　非晶質シリカ溶解速度定数の pH 依存性 ……2-54
図 2.2 45　HFSC-50℃-3Y 試験の固相 Si 量の観察結果と解析結果 ……2-55
図 2.2 46　HFSC-80℃-4Y の固相 Si 量観察結果と解析結果 ……2-56
図 2.2 47　 ケース 3-2 （HFSC-50℃-3Y 試験を模擬）、ケース 4-2 （HFSC-80℃-4Y を模擬）におけるセメント側の固相 K, S, Ca/Si 分布 ……2-57
図 2.2 48　L/S = 2 kg/kg の IEW 中で水和し、その後 L/S = 5 kg/kg から 10000 kg/kg の幌延地下水中で徐々に分解した HFSC424 の粉末 XRD パターン。 ……2-66
図 2.2 49　[a-k] IEW 中で水和し、IEW（RWMC and JAEA, 2020）または幌延地下水（本研究）で水和・劣化させた HFSC424 の実測組成（記号）とシミュレーション組成（実線）を L/S 比（kg/kg）の関数として示す。 ……2-67
図 2.2 50　t=20℃、L/S=1 で水和した OPC ペーストの X 線回折パターン、および L/S=1、2、5 で水和した OPC ペーストの 56 日後の 80℃における X 線回折パターン。 ……2-72
図 2.2 51　11Å トバモライトの低温熱容量測定結果。直線は T = 273.15-373.15 K の区間において最もフィットするもの。 ……2-77
図 2.2 52　14Å トバモライトの低温熱容量測定結果。直線は T ＞ 273.15 K の区間において最もフィットするもの。 ……2-78
図 2.2 53　表 2.2 46 および表 2.2 47 のデータを用いて計算した反応(式(2.2 3))の log K = 0 と、実測の t = 105 ℃(Maeshima et al., 2003)の比較結果。 ……2-81
図 2.2 54　作製した吹付けコンクリート供試体の定置養生の状況 ……2-82
図 2.2-55　コア試料採取場所 ……**エラー! ブックマークが定義されていません。**
図 2.2 56　強度特性に関する各試験・分析項目の結果 ……2-90

図 2.2 57　定置供試体における中性化深さ測定結果 ……2-93
図 2.2 58　吹付け支保工供試体における中性化深さ測定結果 ……2-94
図 2.2 59　水分量の測定結果 ……2-96
図 2.2 60　定置供試体における空隙率の微分細孔容積分布 ……2-97
図 2.2 61　吹付け支保工供試体における空隙率の微分細孔容積分布の一例 ……2-98
図 2.2 62　定置供試体の EPMA 観察結果 ……2-104
図 2.2 63　吹付け支保工供試体の EPMA 観察結果の一例 ……2-107
図 2.2 64　吹付け支保工供試体の岩盤側で認められた試料の濡れ ……2-108
図 2.2 65　定置供試体の SEM 観察結果（左：500 倍、右：5,000 倍） ……2-109
図 2.2 66　吹付け支保工供試体の SEM 観察結果（左：500 倍、右：5,000 倍） ……2-112
図 2.2 67　使用したコアの採取場所 ……2-116
図 2.2 68　岩石試料の X 線写真 ……2-117
図 2.2 69　風乾による飽和度と乾燥時間（左図）および炉乾による飽和度と乾燥時間（右図）‥ ……2-118
図 2.2 70　風乾（左図）および炉乾（右図）により飽和度を調整した試料 ……2-119
図 2.2 71　予備試験におけるひずみゲージと LDT による測定結果の比較。ひずみは圧縮方向を正として表示。 ……2-119
図 2.2 72　試験に使用した試料の湿潤密度と飽和度 ……2-122
図 2.2 73　一軸圧縮試験後の S1-9（左図）および S1-10（右図）試料 ……2-124
図 2.2 74 飽和度を 70%に設定した場合（左図）と 70%に設定した場合（右図）の全試料における応力ひずみ曲線。ひずみは、圧縮方向を正として表示。 ……2-124
図 2.2 75　飽和度が 100%の場合の弾性係数（Es50）（左図）および一軸圧縮強さ（右図） …… ……2-125
図 2.2 76　飽和度が 70%の場合の弾性係数（Es50）（左図）および一軸圧縮強さ（右図） …… ……2-125
図 2.2 77　測定結果に式(2.2 16)を適用した結果 ……2-127
図 2.2 78　試験片の外観 ……2-131
図 2.2 79　二次鉱物の産状 ……2-132
図 2.2 80　Na-Ca 硫酸塩の顕微ラマンスペクトル ……2-133
図 2.2 81　75℃における CaSO4 - Na2SO4 - H2O 系の溶解度曲線 ……2-135
図 2.2 82　実験に使用したベントナイト充填カラム(a)とカラムの内部構造(b) ……2-137
図 2.2 83　(a) Fe(OH)3 および (b) 非晶質シリカの溶解度曲線 ……2-137
図 2.2 84　試験後のカラム試料の分割方法 ……2-138
図 2.2 85　FeCl3 浸漬試験前後でのベントナイトの X 線回折プロファイル ……2-138
図 2.2 86　反応溶液中の沈殿物の X 線回折プロファイル ……2-140
図 2.2 87　異なる相対湿度下でのモンモリロナイトの層間距離（FeCl3 浸漬試験） ……2-140
図 2.2 88　浸漬試験前後での SEM 観察像 ……2-141
図 2.2 89　Na2SiO3 浸漬試験前後でのベントナイトの X 線回折プロファイル ……2-142
図 2.2 90　異なる相対湿度下でのモンモリロナイトの層間距離（Na2SiO3 浸漬試験） ….2-142

図 2.2 91　浸漬試験後の SEM 観察像 ……2-143
図 2.2 92　通水試験中の透水係数の変化 ……2-144
図 2.2 93　Na2SiO3 通水試験前後でのベントナイトの X 線回折プロファイル ……2-145
図 2.2 94　異なる相対湿度下でのモンモリロナイトの層間距離（Na2SiO3 通水試験） ….2-145
図 2.2 95　通水試験後のベントナイトの SEM 観察像 ……2-146
図 2.2 96　Na2SiO3 通水試験による二次鉱物の産状 ……2-147
図 2.2 97　FIB での加工過程 ……2-148
図 2.2 98　薄膜の全体像(左)および観察結果(右) ……2-149
図 2.2 99　STEM-EDS による元素マップおよびスペクトル（観察箇所①、②） ……2-150
図 2.2 100　Na-Mg-Al-Si-K-Ca-Fe-H2O 系での溶解度曲線 ……2-152
図 2.3 1　熱－水－応力－化学（THMC）連成解析コード Couplys の概略 ……2-155
図 2.3 2　温度勾配水分移動試験 ……2-156
図 2.3 3　温度勾配水分移動試験結果と熱－水連成解析結果 ……2-160
図 2.3 4　緩衝材の温度勾配水分拡散係数 ……2-160
図 2.3 5　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル ……2-162
図 2.3 6　THC 連成解析における温度の境界条件 ……2-163
図 2.3 7　緩衝材中の温度と間隙水飽和度に関する THC 連成解析結果 ……2-166
図 2.3 8　FEM の基本的な力学解析機能の検証慶安における境界条件設定 ……2-171
図 2.3 9　一軸圧縮試験を想定した一要素検証解析結果 ……2-172
図 2.3 10　単純せん断試験を想定した一要素検証解析結果 ……2-172
図 2.3 11　物体力および面荷重の検証計算 ……2-173
図 2.3 12　幾何学的境界条件の概念図 ……2-174
図 2.3 13　検証結果の一例 ……2-175
図 2.3 14　幌延国際共同研究プロジェクトのスケジュール ……2-179
図 2.3 15　本研究の計画 ……2-179
図 2.3 16　LOSTUF における緩衝材膨潤モデル ……2-183
図 2.3 17　熱伝導率測定結果 ……2-190
図 2.3 18　比熱測定結果 ……2-193
図 2.3 19　稚内層、緩衝材の熱膨張測定結果（左）および熱膨張係数（右） ……2-196
図 2.3 20　埋戻し材①、②の熱膨張測定結果および熱膨張係数 ……2-197
図 2.4 1　NF 核種移行評価において考慮が必要な場の特性・状態と本事業の課題の関係 ……
……2-202

第 3 章　熱影響評価技術の高度化

図 3.1 1　オーバーパック近傍での温度・飽和度変遷イメージ ……3-2
図 3.1 2　幌延地下研究施設における人工バリア性能確認試験（中山ほか、2109） ……3-2
図 3.1 3　比抵抗トモグラフィによる人工バリア性能確認試験での緩衝材内水分分布測定例 ……
……3-3
図 3.1 4　本事業で想定した人工バリア設置直後からの周辺環境の変遷に関するイメージ …3-4

図 3.2 1　熱伝導解析に用いた解析条件……3-6
図 3.2 2　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m……3-8
図 3.2 3　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m……3-9
図 3.2 4　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m……3-9
図 3.2 5　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m……3-10
図 3.2 6　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m……3-11
図 3.2 7　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m……3-11
図 3.2 8　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m……3-12
図 3.2 9　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m……3-13
図 3.2 10　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m……3-13
図 3.2 11　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m……3-14
図 3.2 12　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m……3-15
図 3.2 13　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m……3-15
図 3.2 14　深成岩類の場合の緩衝材内の温度が最高温度に到達した時の温度分布……3-16
図 3.2 15　先新第三紀堆積岩類の場合の緩衝材内の温度が最高温度に到達した時の温度分布……3-16
図 3.3 1　試験実施場所……3-19
図 3.3 2　試験系の全体図（試験孔 1 設置時）……3-20
図 3.3 3　珪砂の粒径加積曲線……3-22
図 3.3 4　緩衝材ブロックの製作工程図……3-22
図 3.3 5　緩衝材ブロック製作時の写真……3-23
図 3.3 6　ヒーターおよび緩衝材定置治具の概念設計図……3-25
図 3.3 7　ヒーターと上蓋との接続部分における止水方法の概略図……3-25
図 3.3 8　緩衝材ブロックの積み重ね順（2 孔共通）……3-27
図 3.3 9　緩衝材ブロックの定置方向（2 孔共通）……3-28
図 3.3 10　緩衝材ブロック内の計測センサーの配置図……3-29
図 3.3 11　緩衝材底部への土圧計設置状況の一例……3-30
図 3.3 12　緩衝材側面への土圧計設置状況の一例（矢印部分）……3-30
図 3.3 13　温度計測センサーの設置状況の一例……3-31
図 3.3 14　水圧計の設置状況の概略図……3-31

図 3.3 15　比抵抗トモグラフィの電極設置状況の概略図 ……3-32
図 3.3 16　比抵抗トモグラフィの電極設置 ……3-32
図 3.3 17　比抵抗トモグラフィの遠電極設置位置（350 m 試験坑道上） ……3-33
図 3.3 18　試験孔内の排水時の様子（試験孔 1） ……3-33
図 3.3 19　試験孔内での温度の計測結果 ……3-35
図 3.3 20　試験孔内での全応力の計測結果 ……3-37
図 3.3 21　試験孔内での水圧の計測結果 ……3-38
図 3.3 22　試験孔内設置前の抵抗測定値のプロット ……3-39
図 3.3 23　試験孔内設置前の測定における隣接電極間の抵抗測定値分布 ……3-39
図 3.3 24　試験孔内設置後の抵抗測定値のプロット ……3-40
図 3.3 25　比抵抗トモグラフィ測定の解析に関するフローチャート ……3-41
図 3.3 26　有限要素法グリッド ……3-42
図 3.3 27　比抵抗分布の解析結果 ……3-44
図 3.4 1　過渡期における緩衝材の温度環境（NUMO-TR-22-02 の P25 図 1 を基に作成） ……
……3-46
図 3.4 2　エックス線 CT 装置 ……3-47
図 3.4 3　試験概略図 ……3-48
図 3.4 4　湿潤密度と CT 値の関係 ……3-49
図 3.4 5　CASE1-1 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果 ……3-50
図 3.4 6　CASE1-2 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果 ……3-51
図 3.4 7　CASE2-1 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果 ……3-51
図 3.4 8　CASE2-2 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果 ……3-51
図 3.4 9　CASE2-3 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果 ……3-52
図 3.4 10　CASE2-4 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果 ……3-52
図 3.4 11　熱履歴によるクラックを有する供試体の内部状態 ……3-53
図 3.4 12　各試験ケースの浸潤量の時間変化 ……3-54
図 3.4 13　CASE1-2 の乾燥後の状態 ……3-54
図 3.4 14　CASE2-2 の乾燥後の状態 ……3-55
図 3.4 15　各試験ケースの試験終了時のヒストグラム ……3-55
図 3.4 16　CASE1-2 の試験前後の供試体の写真 ……3-56
図 3.4 17　CASE2-2 の試験前後の供試体の写真 ……3-56
図 3.4 18　CASE2-4 の試験前後の供試体の写真 ……3-56
図 3.4 19　緩衝材の膨潤圧測定に用いた試験装置の概略図 ……3-59
図 3.4 20　100℃を超える高温条件での膨潤圧測定試験結果 ……3-61
図 3.4 21　乾燥させた供試体の膨潤圧測定試験結果 ……3-62
図 3.4 22　温度と膨潤圧の関係 ……3-64
図 3.4 23　浸潤前の供試体の間隙水飽和度と膨潤圧の関係 ……3-64
図 3.4 24　透水試験装置概略（飽和過程） ……3-67
図 3.4 25　透水試験装置概略（通水過程） ……3-68

図 3.4 26　140℃熱履歴の付与による供試体（φ50mm）の変化 ……3-69
図 3.4 27　透水係数と試験溶液の NaCl 濃度の関係 ……3-70
図 3.4 28　透水試験後の供試体（φ50mm）の外観（幌延地下水相当） ……3-71
図 3.4 29　透水試験後の供試体（φ50mm）の外観（海水相当） ……3-71
図 3.4 30　温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置 ……3-74
図 3.4 31　膨潤圧過程 ……3-74
図 3.4 32　体積ひずみと載荷圧関係 ……3-75
図 3.4 33　体積ひずみと載荷圧関係（平均値） ……3-76
図 3.4 34　間隙比と載荷圧関係 ……3-76
図 3.4 35　間隙比と載荷圧関係（平均値） ……3-77
図 3.4 36　載荷過程での間隙比変化 ……3-78
図 3.4 37　温度変化過程での変位の時間変化　CASE-1-1　（赤：変位、紫：温度） ……3-79
図 3.4 38　温度変化過程での変位の時間変化　CASE-1-2　（赤：変位、紫：温度） ……3-79
図 3.4 39　温度変化過程での変位の時間変化　CASE-2-1　（青：変位、紫：温度） ……3-80
図 3.4 40　温度変化過程での変位の時間変化　CASE-2-2　（青：変位、紫：温度） ……3-80
図 3.4 41　温度変化過程での変位の時間変化　CASE-3-1　（黒：変位、紫：温度） ……3-81
図 3.4 42　温度変化過程での変位の時間変化　CASE-3-2　（黒：変位、紫：温度） ……3-81
図 3.4 43　温度変化過程での体積ひずみ変化 ……3-82

第 4 章　ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化
図 4 1　TRU 廃棄物の種類と高レベル放射性廃棄物（HLW）との比較 ……4-1
図 4 2　TRU 廃棄物グループ 2（ハルエンドピース）を対象とした廃棄体からのガス発生量 ……4-2
図 4 3　TRU 廃棄物の廃棄体（グループ 4H）、廃棄体パッケージ、処分場（原子力発電環境整備機構（2021)の抜粋）の概念図 ……4-2
図 4 4　ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化の 5 か年の実施計画 ……4-3
図 4 5　対象とするグループ 4H の TRU 廃棄物の特性 ……4-4
図 4 6　一般的なジオポリマーの分子構造と脱水縮重合反応（日本コンクリート工学会, 2021） ……4-7
図 4 7　セメント、ガラス、ジオポリマー固化の位置づけのイメージ ……4-7
図 4 8　固化手法の種類 ……4-8
図 4 9　照射時間と水素発生量の関係（赤山ら, 2021） ……4-9
図 4 10　平均細孔径と水素発生速度の関係（赤山ら, 2021） ……4-10
図 4 11　表面積当たりの付着水量と水素発生量の関係（赤山ら, 2023） ……4-10
図 4 12　MK+BFS ジオポリマーの固化体の一軸圧縮強度の結果（Yuhara, et al., 2018） ‥4-11
図 4 13　MK+FA ジオポリマーの固化体の一軸圧縮強度の結果（Yuhara, et al., 2018） ….4-11
図 4 14　アルカリ刺激剤の組み合わせをパラメータとした固化体の一軸圧縮強度 ……4-11
図 4 15　各配合での見かけ粘度経時変化（模擬炭酸塩スラリー50wt.%添加） ……4-12
図 4 16　MK＋BFS ジオポリマーペーストの見かけの粘度の経時変化 ……4-13

図 4 17　添加剤種類と低粘度維持時間の関係（湯原ら, 2019）……4-13
図 4 18　ホウ酸添加 MK＋BFS ジオポリマーペーストの見かけの粘度の経時変化 ……4-13
図 4 19　スラリー中の Ca イオン濃度の経時変化（湯原ら, 2019）……4-14
図 4 20　放射線入射に伴う水素発生過程（左図）と直接影響と間接影響の考え方に関する模式図（右図）……4-15
図 4 21　セメント試料の EGA-MS 分析の結果（全域）……4-20
図 4 22　セメント試料の EGA-MS 分析の結果（詳細：縦軸～90000 カウント）……4-20
図 4 23　ジオポリマー試料の EGA-MS 分析の結果（全域）……4-20
図 4 24　ジオポリマー試料の EGA-MS 分析の結果（詳細：縦軸～90000 カウント）……4-21
図 4 25　セメント試料の TG 分析の結果……4-21
図 4 26　ジオポリマー試料の TG 分析の結果……4-21
図 4 27　照射試料の作製及び照射試験のフロー ……4-27
図 4 28　混練時の様子……4-27
図 4 29　固化体の様子……4-27
図 4 30　照射容器……4-28
図 4 31　照射の様子……4-28
図 4 32　水素サンプリング系……4-28
図 4 33　集積線量に対する水素濃度の関係 ……4-29
図 4 34　集積線量に対する水素発生量の関係 ……4-29
図 4 35　試料の含水率と水素発生量の関係 ……4-30
図 4 36　表面積あたりの水分量と水素発生量の関係 ……4-30
図 4 37　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの一軸圧縮強度の混錬後の推移 ……4-32
図 4 38　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの流動性における混錬後の時間推移 ……4-32
図 4 39　容積 1.5 L のモルタルミキサー（左）と供試体の自然乾燥の様子（右）……4-34
図 4 40　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの水分測定結果 ……4-34
図 4 41　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの流動性測定結果 ……4-35
図 4 42　流動性測定の様子……4-35
図 4 43　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの一軸圧縮強度測定結果 ……4-36
図 4 44　一軸圧縮強度測定の様子……4-36
図 4 45　混錬後加熱前の乾式ジオポリマー ……4-38
図 4 46　乾式ジオポリマーの養生条件 ……4-38
図 4 47　使用した乾燥機……4-39
図 4 48　膨張による容器破損と漏れ ……4-39
図 4 49　取り出した固化体の様子……4-39
図 4 50　乾式ジオポリマーの水分値推移 ……4-40
図 4 51　乾式ジオポリマーの一軸圧縮強度測定結果 ……4-40
図 4 52　高強度高緻密コンクリートの配合例（酒本, 2022）……4-41
図 4 53　乾燥期間と高強度高緻密コンクリートの質量変化率の関係 ……4-42
図 4 54　自由水量と水素ガス発生量の関係（原環センター,2022）……4-43

図 4 55　静水圧環境に浸漬した試料の質量変化率の経時変化（繊維補強材あり）（渋谷, 2008）……4-44
図 4 56　高強度高緻密コンクリート及び JIS モルタルの間隙径分布 ……4-45
図 4 57　高強度高緻密コンクリート及び JIS モルタルの微分細孔経容積 ……4-45
図 4 58　高強度高緻密コンクリートの小粒径試料（養生期間 28 日） ……4-47
図 4 59　養生期間と結合水量の関係 ……4-48
図 4 60　XRD 測定結果 ……4-49
図 4 61　結合水量及び Ca(OH)2 量の材齢ごとの比較……4-51
図 4 62　（養生期間 1 日）高-1d の TG-DTA 曲線 ……4-52
図 4 63　（養生期間 3 日）高-3d の TG-DTA 曲線 ……4-52
図 4 64　（養生期間 3 日）高-3d 小粒径の TG-DTA 曲線 ……4-52
図 4 65　（養生期間 7 日）高-7d の TG-DTA 曲線 ……4-53
図 4 66　（養生期間 28 日）高-28d の TG-DTA 曲線……4-53
図 4 67　（養生期間 28 日）高-28d 小粒径の TG-DTA 曲線 ……4-53
図 4 68　小粒径試料における間隙径と微分細孔容積の関係 ……4-55
図 4 69　100μm 以下の累積間隙容積 ……4-55
図 4 70　蒸気養生後の試料の微分細孔容積との比較 ……4-56
図 4 71　高強度高緻密コンクリートのペレット試料（養生期間 28 日） ……4-57
図 4 72　照射試験に使用したパイレックスガラス製照射試験容器 ……4-58
図 4 73　高純度アルゴンガスで照射試験容器内を置換している状況 ……4-58
図 4 74　照射施設の試料台に試料をセットした状況 ……4-59
図 4 75　照射試験後の水素ガス濃度分析の状況 ……4-59
図 4 76　OPC ペーストの粒径と水素発生量の関係及び過年度との比較 （水換算の吸収線量ベース）……4-60
図 4 77　OPC モルタルの水素ガス発生量の過年度との比較 （水換算の吸収線量ベース）……4-60
図 4 78　材料ごとの水素発生量（水換算の吸収線量） ……4-61
図 4 79　（養生期間 3 日）高-3d 試料の FT-IR 測定結果 ……4-65
図 4 80　（養生期間 7 日）高-7d 試料の FT-IR 測定結果 ……4-65
図 4 81　（養生期間 28 日）高-28d 試料の FT-IR 測定結果 ……4-65
図 4 82　（養生期間 28 日）ペレット高-28d 試料の FT-IR 測定結果 ……4-66
図 4 83　材齢および形状の異なる高強度高緻密コンクリートの水素発生量（水換算の吸収線量）……4-66
図 4 84　材齢および形状の異なる高強度高緻密コンクリートの水素発生量（コンプトン効果を考慮した吸収線量） ……4-67
図 4 85　高強度高緻密コンクリートの見かけの G 値（GH2(All)）（吸収線量はコンプトン効果を考慮した吸収線量） ……4-67
図 4 86　自由水量と照射後 8 日間の累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量） ……4-68
図 4 87　材料の違いと、自由水量と照射後 7 日または 8 日間の累積水素発生量の関係（水換算の

吸収線量）……4-68
図 4 88　高強度高緻密コンクリートの水素ガス発生量の比較（水換算の吸収線量）……4-69
図 4 89　100μm 以下の細孔容積と累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量）……4-70
図 4 90　BET 比表面積と累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量）……4-71
図 4 91　対象とする TRU 廃棄物の処分場の処分坑道断面（原子力発電環境整備機構（2021)の抜粋：深成岩、先新第三紀堆積岩類における廃棄物グループ 2 の例）……4-76
図 4 92　人工バリア施工試験データの分析結果のまとめ……4-78
図 4 93　解析モデルの構成……4-79
図 4 94　側部の解析モデルの構成……4-79
図 4 95　過去のモックアップ試験の排水量観測結果……4-82
図 4 96　供試体からの累積排水量の予測解析結果……4-83
図 4 97　ガス移行モックアップ試験装置（原子力機構・原環センター，2019～2023）と供試体の縦断面図（左）及び側部の横断面図（右）……4-84
図 4 98　小規模モックアップ供試体の成型概要図……4-85
図 4 99　供試体の作製過程イメージ……4-85
図 4 100　再冠水過程におけるモックアップ試験状況のイメージ……4-86
図 4 101　各計測システムでの計測状況……4-87
図 4 102　様々な粒子を対象とした透水実験の結果……4-89
図 4 103　混合体の透過率の解析結果と実験結果との比較……4-90
図 4 104　異なる粒子サイズを有する混合体の透水性の考察……4-91
図 4 105　種々の粒子の透過率に関する解析結果と実験結果の比較……4-92
図 4 106　砂の有効空隙率（解析結果，実験結果およびモデル式の比較）……4-93
図 4 107　砂の屈曲度（解析結果，実験結果およびモデル式の比較）……4-94
図 4 108　砂の比表面積（解析結果，実験結果およびモデル式の比較）……4-95

第 5 章　人工バリアの閉じ込め機能の高度化
図 5 1　廃棄体パッケージに要求される設計要件及び評価項目……5-2
図 5 2　セメント系材料による廃棄体パッケージ内充填材の製作方法……5-3
図 5 3　フロー試験や漏斗試験のイメージ……5-4
図 5 4　フレッシュ性状の測定結果……5-5
図 5 5　模擬試験体の概要図……5-6
図 5 6　充填性試験の実施状況……5-7
図 5 7　模擬試験体のコア採取位置……5-8
図 5 8　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B1……5-9
図 5 9　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B2……5-9
図 5 10　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B3……5-10
図 5 11　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B4……5-10
図 5 12　丸鋼とパッケージ内充填材の付着強度試験用供試体の概要……5-11
図 5 13　すべり量と付着応力度の関係……5-12

図 5 14　廃棄体パッケージに求められる閉じ込め性能 …… 5-13
図 5 15　先行事業で製作した実規模廃棄体パッケージ …… 5-13
図 5 16　廃棄体パッケージの切断イメージ …… 5-14
図 5 17　廃棄体パッケージの切断位置 …… 5-15
図 5 18　乾式ダイヤモンドワイヤーソー工法による切断状況 …… 5-15
図 5 19　切断した部材 …… 5-16
図 5 20　試験片採取位置及び番号の割当（蓋板含む上部） …… 5-16
図 5 21　蓋溶接部から採取した引張試験片形状 …… 5-17
図 5 22　蓋溶接部の引張試験結果（試験前と試験後） …… 5-18
図 5 23　蓋溶接部の PWHT 施工時の熱履歴 …… 5-19
図 5 24　蓋溶接部の静的引張試験結果（公称応力と変位） …… 5-20
図 5 25　曲げ試験片形状 …… 5-20
図 5 26　曲げ試験結果 …… 5-21
図 5 27　断面マクロ試験結果 …… 5-22
図 5 28　マクロ 1-R の硬さ試験結果 …… 5-23
図 5 29　先行事業で実施した溶接試験体による硬さ試験結果との比較 …… 5-24
図 5 30　腐食試験片の加工 …… 5-25
図 5 31　腐食試験片のマクロ観察 …… 5-25
図 5 32　腐食試験片の外観 …… 5-25
図 5 33　試験装置の概略図 …… 5-26
図 5 34　試験の実施状況 …… 5-26
図 5 35　廃棄体パッケージに求められる閉じ込め性能（再掲） …… 5-27
図 5 36　蓋溶接部から切出したブロック部材 …… 5-28
図 5 37　グリップレス型試験片の形状 …… 5-28
図 5 38　試験片を採取した方向 …… 5-29
図 5 39　検力ブロック式高速度試験装置 …… 5-30
図 5 40　Type 1-A（母材部／溶接線方向）の試験結果 …… 5-31
図 5 41　Type 1- B（溶接金属部／溶接線方向）の試験結果 …… 5-32
図 5 42　引張試験の解析モデル …… 5-34
図 5 43　Type1-A／Group-A の再現解析結果 …… 5-36
図 5 44　Type1-B／Group-A の再現解析結果 …… 5-37
図 5 45　解析の対象とする廃棄体パッケージ …… 5-38
図 5 46　廃棄体パッケージモデルの全体図 …… 5-39
図 5 47　廃棄体パッケージ容器本体と溶接部断面 …… 5-40
図 5 48　模擬廃棄体パッケージ容器本体と溶接部断面 …… 5-40
図 5 49　廃棄体パッケージ内充填材 …… 5-40
図 5 50　締結用ボルト・ナット …… 5-41
図 5 51　各材料の真応力-相当塑性ひずみ関係 …… 5-42
図 5 52　解析ケース …… 5-43

図 5 53　蓋側角部コーナー落下の荷重ピーク時（0.005s）の全体挙動 …… 5-44
図 5 54　蓋側角部コーナー落下の荷重ピーク時（0.005s）の蓋溶接部 …… 5-44
図 5 55　蓋側角部コーナー落下時のエネルギー収支 ……5-44
図 5 56　先行事業の解析結果との比較 ……5-45
図 5 57　蓋側辺部落下の荷重ピーク時（0.0016s）の全体挙動 ……5-46
図 5 58　蓋側辺部落下の荷重ピーク時（0.0016s）の蓋溶接部 ……5-46
図 5 59　蓋側辺部落下時のエネルギー収支 ……5-46
図 5 60　蓋側角部コーナー落下の荷重ピーク時（0.005s）の相当塑性ひずみ ……5-47
図 5 61　蓋側角部コーナー落下の荷重ピーク時（0.005s）の応力三軸度 ……5-48
図 5 62　蓋側辺部落下の荷重ピーク時（0.0016s）の相当塑性ひずみ ……5-48
図 5 63　蓋側辺部落下の荷重ピーク時（0.0016s）の応力三軸度 ……5-49
図 5 64　各ケースの応力拡大係数の評価要素 ……5-50
図 5 65　想定亀裂進展方向 ……5-50
図 5 66　最大応力拡大係数の経時変化 ……5-51
図 5 67　応力拡大係数最大時の分布 ……5-51
図 5 68　溶接部表面の処理 ……5-56
図 5 69　加熱コイル設置状況 …… 5-56
図 5 70　バニシングによる施工イメージ …… 5-57
図 5 71　I-129 の最大被ばく線量と浸出期間の関係 ……5-60
図 5 72　ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化の 5 カ年の計画 ……5-63
図 5 73　BPI ガラス表面に析出した、鉛－ヨウ素からなる球状の 2 次鉱物とその分析結果 ……
……5-63
図 5 74　BPI ガラス固化体の浸漬試験に於けるヨウ素の溶出にともなう現象の分類 ……5-64
図 5 75　浸漬試験結果に基づいて推定した BPI ガラス固化体からのヨウ素の溶出過程 ……5-64
図 5 76　ベントナイト平衡水に 3650 日浸漬した BPI ガラス固化体の ……5-66
図 5 77　STXM による炭素、ホウ素、ヨウ素のマッピング ……5-66
図 5 78　非晶質部のホウ素の吸光度マッピング ……5-67
図 5 79 STEM-EDS によるヨウ素、鉛、亜鉛の線分析の結果 ……5-67
図 5 80　古典（縦軸）及び DFT 計算（横軸）で評価された力場の対応関係（最適化後） ‥5-70
図 5 81　初期値及び最適化された原子間ポテンシャルパラメータを用いたα-PbO の MD 計算に
よる平均二乗変位と構造再現 ……5-71
図 5 82　BPI ガラスからの変質/ヨウ素溶出の理論モデル化の模式図 ……5-72
図 5 83　555 日 NaCl 水溶液に浸漬した試料の XRD …… 5-73
図 5 84　球状の 2 次鉱物の表面及び内部の EELS 分析の結果 …… 5-74
図 5 85　球状の 2 次鉱物の電子線回折の結果 …… 5-74
図 5 86 ヨウ素及び鉛を含む析出物のμ-XRD の結果 …… 5-75
図 5 87（O2Pb3)2(BO3)I の構造（Li,2020） …… 5-76

表　目　次

第 2 章　ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化

表 2.2 1　KV の土粒子の密度 ……2-4
表 2.2 2　KV の化学組成（単位 wt%） ……2-5
表 2.2 3　KV の浸出イオン量 ……2-6
表 2.2 4　KV の層間陽イオン量の推定値 ……2-6
表 2.2 5　KV の TIRON 溶液による浸出イオン量……2-6
表 2.2 6　KV のメチレンブルー吸着量 ……2-7
表 2.2 7　分割作業に用いた供試体の状態と流入側の流量から算出した透水係数 ……2-10
表 2.2 8　3D スキャン及びノギスを用いた繰返し測定における測定精度……2-11
表 2.2 9　含水比及び乾燥密度の測定結果一覧……2-12
表 2.2 10　切り出した試料の含水比 ……2-14
表 2.2 11　切り出した試料の乾燥密度 ……2-16
表 2.2 12　試験条件 ……2-19
表 2.2 13　X 線分析分析条件 ……2-20
表 2.2 14　顕微ラマン分光分析分析条件 ……2-21
表 2.2 15　試験後の溶液および緩衝材 pH 測定結果 ……2-22
表 2.2 16　重量減量から算出した腐食量および腐食速度 ……2-23
表 2.2 17　先行事業で作成した接触試験体の条件一覧と回収状況 ……2-35
表 2.2 18　HFSC 接触試験体の仕様……2-36
表 2.2 19　μ-XCT の分析条件 ……2-37
表 2.2 20　EPMA の分析条件 ……2-38
表 2.2 21　μ-XRF および透過 X 線分析の測定条件……2-39
表 2.2 22　粉末 XRD 分析の測定条件 ……2-41
表 2.2 23　μ-XRD の分析条件 ……2-42
表 2.2 24　相対湿度制御下での XRD 分析の条件 ……2-42
表 2.2 25　BIB 加工および SEM-EDS 分析の条件 ……2-44
表 2.2 26　切片試料の作製および TEM 分析の条件 ……2-46
表 2.2 27　LC 量測定の結果 ……2-47
表 2.2 28　WCA の結果 ……2-47
表 2.2 29　現モデルによる長期挙動予察解析のケース設定 ……2-50
表 2.2 30　フィリップサイトの溶解・沈殿パラメータの検討のための解析ケース設定……2-52
表 2.2 31　C-(A-)S-H ゲル、カルセドニ溶解沈殿パラメータ検討のためのケース設定と結果 ……
……2-55
表 2.2 32　各水準の結果の平均値 ……2-55
表 2.2 33　HFSC-80℃-4Y 試験再現解析のためのケース設定 ……2-56
表 2.2 34　HFSC424 劣化試験の条件一覧……2-60
表 2.2 35　HFSC424 中の SF と FS のポゾラン反応率 ……2-61

表 2.2 36　OPC、SF、FA の酸化物組成（wt.%）および強熱減量（ig.loss)。 ……2-62
表 2.2 37　OPC、SF および FA の無水鉱物組み合わせ。 ……2-63
表 2.2 38　1kg の HFSC424 に相当する無水鉱物組み合わせ ……2-63
表 2.2 39　幌延地下水組成の測定値および解析値。 ……2-65
表 2.2 40　OPC 水和試験の条件一覧 ……2-70
表 2.2 41　シミュレーションに使用した OPC クリンカーの組成（wt.%）と強熱減量（ig.loss、wt.%） ……2-71
表 2.2 42　20℃および 80℃で L/S=1kg/kg、20℃で L/S=2kg/kg で水和させた OPC ペーストの 56 日間水和後の溶液分析結果 ……2-73
表 2.2 43　L/S=1kg/kg で 20℃および 80℃で水和した OPC ペーストの液相の実測値とシミュレーション結果 ……2-74
表 2.2 44　L/S=2.0 および 5.0kg/kg、80℃における OPC ペーストの液相のシミュレーション結果 ……2-75
表 2.2 45　11Å トバモライトと 14Å トバモライトの合成方法 ……2-76
表 2.2 46　11Å トバモライトの熱力学的性質と Maier-Kelley 係数。 ……2-79
表 2.2 47　14Å トバモライトの熱力学的性質と Maier-Kelley 係数。 ……2-80
表 2.2 48　気中養生した定置供試体の識別番号と分析項目の一覧 ……2-83
表 2.2 49　水中養生した定置供試体の識別番号と分析項目の一覧 ……2-84
表 2.2 50　地下施設から採取した支保工供試体の識別番号と分析項目の一覧 ……2-86
表 2.2 51　Tukey-Kramer の HSD 検定による試験・分析結果の比較 ……2-91
表 2.2 52　中性化速度係数の比較結果 ……2-95
表 2.2 53　アウトプット法での透水試験結果 ……2-98
表 2.2 54　インプット法での透水試験結果 ……2-100
表 2.2 55　地盤工学会の方法での透水試験結果 ……2-101
表 2.2 56　　定置供試体の EDS 分析結果（平均値±標準誤差） ……2-110
表 2.2 57　吹付け支保工供試体の EDS 分析結果（平均値±標準誤差） ……2-113
表 2.2 58　使用したコアサンプルの詳細 ……2-117
表 2.2 59　岩石試料を浸水時間および水中重量 ……2-118
表 2.2 60　実験を実施した載荷応力速度と試料数 ……2-121
表 2.2 61　飽和度調整後の試験に用いた試料の重量等 ……2-121
表 2.2 62　飽和度 100%の岩石試料を用いた、載荷応力速度を変化させた場合の一軸圧縮試験結果 ……2-123
表 2.2 63　飽和度 70%の岩石試料を用いた、載荷応力速度を変化させた場合の一軸圧縮試験結果 ……2-123
表 2.2 64　Siderite の化学組成 ……2-132
表 2.2 65　硫酸塩の化学組成 ……2-133
表 2.2 66　FeCl3 浸漬試験中の溶液組成の変化 ……2-139
表 2.2 67　Na2SiO3 浸漬試験中の溶液組成の変化 ……2-142
表 2.2 68　Na2SiO3 通水試験中のアウトプット溶液組成の変化 ……2-144

表 2.2 69　各鉱物の面積割合 ……2-146
表 2.2 70　カラム内部での主要元素の物質量の収支 ……2-151
表 2.3 1　温度勾配水分移動試験を対象とした緩衝材の解析物性値 ……2-159
表 2.3 2　温度勾配水分移動試験の解析ケース ……2-160
表 2.3 3　人工バリア性能確認試験試の解析評価における初期間隙水組成 ……2-163
表 2.3 4　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた物性値 ……2-165
表 2.3 5　三次元プロトタイププログラムのソースコードファイル一覧 ……2-169
表 2.3 6　三次元プロトタイププログラムで使用しているライブラリ ……2-169
表 2.3 7　材料ごとに設定した解析条件一覧 ……2-174
表 2.3 8　MACBECE の並列化手法 ……2-177
表 2.3 9　LOSTUF に必要な解析パラメータ一覧（熱・水） ……2-184
表 2.3 10　LOSTUF に必要な解析パラメータ一覧（力学） ……2-184
表 2.3 11　Couplys に用いられた解析用物性値（鈴木ほか, 2023） ……2-185
表 2.3 12　MACBECE、THAEMS に用いられた解析用物性値 ……2-186
表 2.3 13　試験項目、使用機器、手法 ……2-188
表 2.3 14　試料の種類、状態、試験数量 ……2-188
表 2.3 15　熱伝導率測定の供試体一覧 ……2-191
表 2.3 16　比熱容量測定の供試体一覧 ……2-194
表 2.3 17　熱膨張測定の供試体一覧 ……2-198
表 2.3 18　熱伝導率測定結果（平均値） ……2-200
表 2.3 19　比熱測定結果（平均値） ……2-200
表 2.3 20　熱膨張係数（平均値） ……2-200
表 2.4 1　炭素鋼－ベントナイト相互作用に関わる複合現象評価において抽出された課題の例 ……2-203
表 2.4 2　2.2.1 項および 2.2.2 項の成果の核種移行評価への反映 ……2-204
表 2.4 3　2.2.3 項および 2.2.4 項の成果の核種移行評価への反映 ……2-205
表 2.4 4　2.2.5 項および 2.3 項の成果の核種移行評価への反映 ……2-206
表 2.4 5　3 章の成果の核種移行評価への反映 ……2-207

第 3 章　熱影響評価技術の高度化

表 3.2 1　NUMO-SC における坑道中心間距離の設定結果 ……3-5
表 3.2 2　熱伝導解析に用いた解析用物性値 ……3-6
表 3.3 1　緩衝材ブロックの製作に関する各種設定値および管理基準値 ……3-24
表 3.3 2　計測機器一覧 ……3-26
表 3.3 3　水位計の設置高さ（試験坑道 5 の路盤高さを基準位置とした場合） ……3-31
表 3.3 4　同一のセンサー位置における試験孔 1 の温度と試験孔 2 の温度差（3/18 11:00 時点） ……3-35
表 3.4 1　CT 値と湿潤密度の関係式の構築に用いた試料 ……3-48
表 3.4 2　CT 測定の試験ケース ……3-49

表 3.4 3　膨潤圧測定試験条件 ……3-59
表 3.4 4　膨潤圧測定試験結果 ……3-63
表 3.4 5　透水試験条件（140 ℃熱履歴無し） ……3-66
表 3.4 6　透水試験条件（140 ℃熱履歴有り） ……3-67
表 3.4 7　透水係数の算出結果 ……3-69
表 3.4 8　圧密試験ケース ……3-75
表 3.4 9　載荷条件 ……3-75
表 3.4 10　　試験条件 ……3-77

第 4 章　ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化
表 4 1　既存の放射性廃棄物の固化処理技術 ……4-5
表 4 2　本節の技術開発で検討する固化処理技術と主な特徴 ……4-5
表 4 3　無機添加剤含有ジオポリマーの配合※ ……4-8
表 4 4　無機添加剤含有ジオポリマーの改良のポイント ……4-15
表 4 5　セメント試料の配合比※ ……4-19
表 4 6　ジオポリマー試料の配合比 ……4-19
表 4 7　EGA-MS 分析のピーク面積値 ……4-19
表 4 8　セメント試料の配合条件 ……4-25
表 4 9　セメント試料の配合比 ……4-25
表 4 10　ジオポリマー試料の配合比 ……4-25
表 4 11　混練時の粘度及び固化体の含水率 ……4-26
表 4 12　一軸圧縮強度試験の結果 ……4-26
表 4 13　各配合の平均含水率、水素発生量と水素ガス発生量の結果 ……4-26
表 4 14　各配合のガス吸着法による比表面積・細孔径分布測定結果 ……4-26
表 4 15　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの特徴 ……4-31
表 4 16　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの基本配合 ……4-31
表 4 17　ジオポリマーの物性データの目標値 ……4-33
表 4 18　約 1 年経過後の代表的な配合のジオポリマーサンプルの水分測定結果 ……4-34
表 4 19　乾式ジオポリマーの配合と固化処理条件の例 ……4-37
表 4 20　試薬詳細と配合 ……4-38
表 4 21　乾式ジオポリマー乾燥時の体積減少 ……4-40
表 4 22　強度試験結果の例（原環センター，2005） ……4-42
表 4 23　高強度高緻密コンクリートの試料条件（原環センター,2022） ……4-43
表 4 24　高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討の試験水準と試験項目 ……4-46
表 4 25　使用材料 ……4-47
表 4 26　高強度高緻密コンクリートの自由水量と結合水量の測定結果 ……4-48
表 4 27　XRD による鉱物同定結果 ……4-49
表 4 28　粒径の異なる試料の化学組成 ……4-50
表 4 29　TG-DTA の測定結果 ……4-51

表 4 30　高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価の試験水準と分析項目 ……4-56
表 4 31　水素ガス発生試験に使用材料 ……4-57
表 4 32　OPC ペースト及び OPC モルタルの供試試料 ……4-58
表 4 33　高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価の試験結果 ……4-59
表 4 34　過年度と令和 5 年度のガス回収方法の差異 ……4-61
表 4 35　細孔構造の違いによる水素ガス発生量への影響検討の試験水準と分析項目 ……4-62
表 4 36　使用材料 ……4-62
表 4 37　高強度高緻密コンクリートの供試試料 ……4-63
表 4 38　各試料の自由水量、BET 比表面積と累積水素ガス発生量（水換算の吸収線量） …4-64
表 4 39　コンプトン効果を考慮した試料の吸収線量での水素ガス発生量とみかけの G 値 …4-64
表 4 40　単位表面積当りの水素ガス発生量 ……4-70
表 4 41　解析ケース設定 ……4-81
表 4 42　注水飽和過程の時系列 ……4-86

第 5 章　人工バリアの閉じ込め機能の高度化
表 5 1　5 か年の実施計画 ……5-1
表 5 2　検討項目と対応する設計因子 ……5-2
表 5 3　高強度高緻密コンクリートの配合例 ……5-4
表 5 4　使用材料 ……5-4
表 5 5　SP 添加量による圧縮強度の測定結果 ……5-5
表 5 6　模擬試験体による充填性試験における廃棄体パッケージ内充填材の配合 ……5-6
表 5 7　模擬試験体による充填性試験水準 ……5-7
表 5 8　充填性試験に用いた廃棄体パッケージ内充填材のフレッシュ性状の測定結果 ……5-8
表 5 9　充填性試験結果 ……5-9
表 5 10　採取したコア供試体の圧縮強度及び見かけの密度の測定結果 ……5-10
表 5 11　圧縮強度、静弾性係数、ポアソン比及び引張強度の試験結果 ……5-11
表 5 12　丸鋼と充填材の付着強度試験結果 ……5-12
表 5 13　試験片名と各番号の割当（蓋板含む上部） ……5-16
表 5 14　先行事業で実施した溶接部の継手性能及び機械的性質確認試験（ティグ溶接） ……5-17
表 5 15　引張試験の試験条件 ……5-18
表 5 16　ミルシートの材料データ ……5-19
表 5 17　蓋溶接部の引張試験結果 ……5-19
表 5 18　曲げ試験の試験条件 ……5-20
表 5 19　硬さ試験の試験条件 ……5-23
表 5 20　浸漬試験条件 ……5-24
表 5 21　高速引張試験の試験水準 ……5-29
表 5 22　高速引張試験の試験条件 ……5-30
表 5 23　T-M2009 パラメータ ……5-33
表 5 24　再現解析のケース ……5-34

表 5 25　モデル化の対象となる構成部品.....5-39
表 5 26　解析に使用した材料構成則及び材料物性.....5-41
表 5 27　廃棄体パッケージの蓋板、容器本体及び蓋溶接部に適用する T-M パラメータ 5-42
表 5 28　表面応力改善（表面改質）方法の特性評価 5-57
表 5 29　バニシングによる主効果と付随効果 5-58
表 5 30　ヨウ素固定化技術への要求.....5-61
表 5 31　α-PbO（上段）及びβ-PbO（下段）に最適化した Buckingham パラメータ ……5-69

1. 緒言

1.1. 本事業の背景と目的

本事業は、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（ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発)】として、経済産業省資源エネルギー庁（以下、資源エネルギー庁）から国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構)、公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター（以下、原環センター)、一般財団法人電力中央研究所（以下、電中研）の 3 機関が共同で受託したものである。本事業の背景と目的を以下に記す。

地層処分事業における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技術が求められる。この実現には、高レベル放射性廃棄物（HLW）と TRU 廃棄物の地層処分システムの処分施設の建設・操業期間から処分施設閉鎖後直後の過渡期から数万年以上の長期にわたる期間を対象に、ニアフィールドを構成する材料間及び諸現象間の相互作用などを考慮したニアフィールドの状態変遷をより現実的に評価するための技術開発が必要となる。そのため、ニアフィールドの状態変遷の評価技術開発として､処分施設閉鎖後直後の過渡期には特に熱(緩衝材温度の 100 ℃ 超えを含む)、力学、化学（物質移動を含む)、ガス発生等の個別現象とそれらが相互に影響を及ぼす連成現象のさらなる理解と評価モデルの高度化及びモデルの妥当性確認が求められる。そして、より長期の期間については、ニアフィールド構成材料（オーバーパックである鉄、緩衝材であるベントナイト、支保工であるセメント系材料、坑道周辺の岩盤）の長期挙動とそれら材料の相互作用について、さらなるデータ取得により現象理解を深め、評価モデルの高度化を進めるとともにそのモデルの妥当性の確認が必要である。さらに、TRU 廃棄物に特有な課題として、ガスの発生の影響や廃棄体容器による核種の閉じ込め性能の向上に係る課題等も存在する。このような技術開発の実施にあたっては、ニアフィールドを構成している材料に期待している、核種移行遅延効果などの諸機能に及ぼす影響を評価することを可能とするために、関連事業（「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)」）と連携し、ニアフィールドの状態変遷を核種移行評価に反映させることに留意する必要がある。

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、HLW と TRU 廃棄物の地層処分システムを対象に、過渡期から処分施設閉鎖後長期における NF を構成する材料間の相互作用などを考慮した NF の状態変遷をより現実的に評価する技術の構築を目的として、処分場においてガラス固化体がおかれる状態をより忠実に反映した条件における複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷の評価、TRU 廃棄物の地層処分の信頼性を担保する人工バリアの閉じ込め機能の高度化、廃棄体による水の放射線分解等に由来して発生するガスの影響評価を実施するとともに、ガス発生量低減に向けた固化処理技術の開発を実施する。

1.2. 実施計画

本事業では、先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」（原子力機構・原環センター, 2023）および「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」（原環センター・原子力機構, 2023）で得られた成果と抽出された課題を踏まえ、以下（1）～（4）に示すサブプロジェクトを設定し、各現象の理解の深化、現象解析モデルの開発、長期挙動や相互作用のモデル化や評価手法・手順の構築などを通じて、処分システムの過渡期から長期にわたる状態変遷評価手法の高度化を進める。また、廃棄体の発熱による人工バリア性能への影響に対する処分場設計の安全尤度や、緩衝材の制限温度の緩和の可能性などの観点から、100 ℃ 超を含む熱影響の評価を行う。更に、

TRU 廃棄物処分におけるガスや核種の放出に係る廃棄体や容器の特性の向上とともに、それらの成果の状態変遷評価手法の高度化への反映を目指す。

（１） ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化
①ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化
②熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの確証
③多様な地下水環境におけるバリア材料の変遷評価
（２） 熱影響評価技術の高度化
①ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析
②幌延地下施設での 100 °C 超条件における原位置試験
③100 °C 超を含む温度条件における緩衝材特性の評価
（３） ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化
①ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発
②水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化
（４） 人工バリアの閉じ込め機能の高度化
①廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発
②ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化

本事業で検討対象とする現象等と本事業での実施項目の関係を、NUMO の包括的技術報告書（NUMO, 2021）にて適用された処分概念に基づいてニアフィールドにおける構成要素の配置を簡略的に示した模式図とともに図 1-1 に示す。HLW、TRU の処分いずれにも共通的な取り扱いが可能と考えられる領域や材料配置を対象とした課題については成果についても共通的な活用を目指して研究開発を進める。

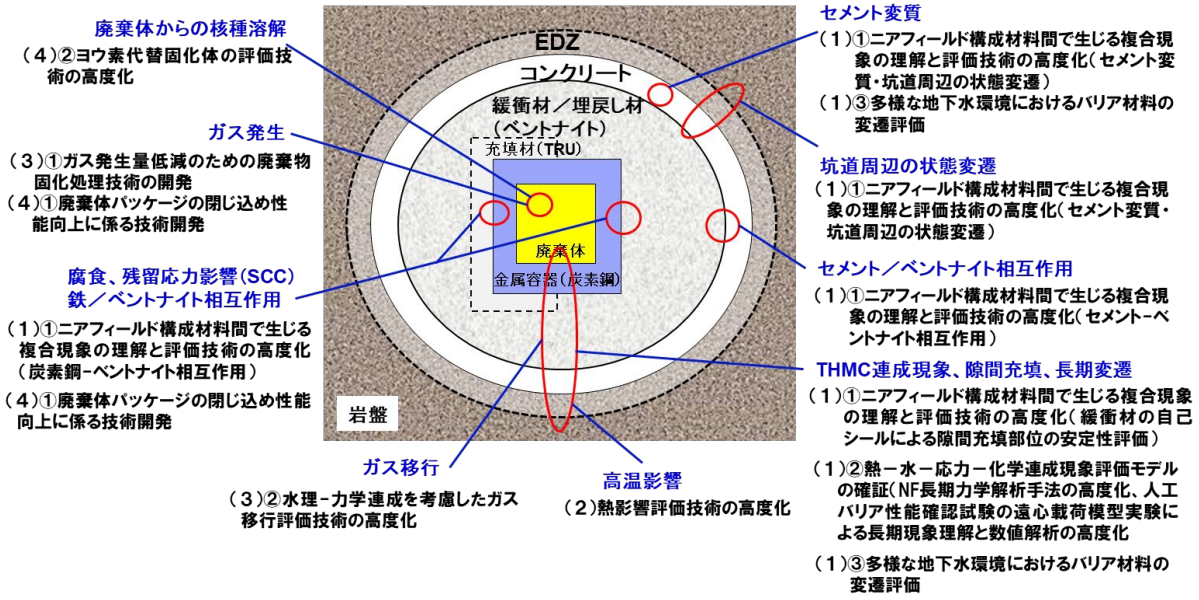


図 1-1　HLW, TRU 処分でのニアフィールドにおける材料配置、現象・材料間相互作用と、本事業での実施項目の関係

以下に（１）～（４）の 5 か年の計画概要を示す。

(1)　ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化

過渡期から処分施設閉鎖後の長期における評価では、ニアフィールドを構成する材料の相互作用等の複合的な評価技術の信頼性向上が必要である。長期室内試験、ナチュラルアナログ研究、幌延地下研究施設で取得された試料等を対象に炭素鋼－ベントナイト－セメントの相互作用に関わる現象の解明を進める。また、熱－水－力学－化学の連成現象（THMC 連成現象）については、幌延の人工バリア性能確認試験で得られたデータを活用し、力学の影響を含めて評価可能な解析モデルにより再現解析を実施し、モデルの検証を行う。さらに、最終的には以下①、②の個別の成果と後述する（2）～（4）で得られた成果について、図 1-2 に示すようにニアフィールド状態変遷評価技術として統合するとともに（設計・建設操業段階等に反映する課題を除く）、ニアフィールド核種移行評価への反映を図る。

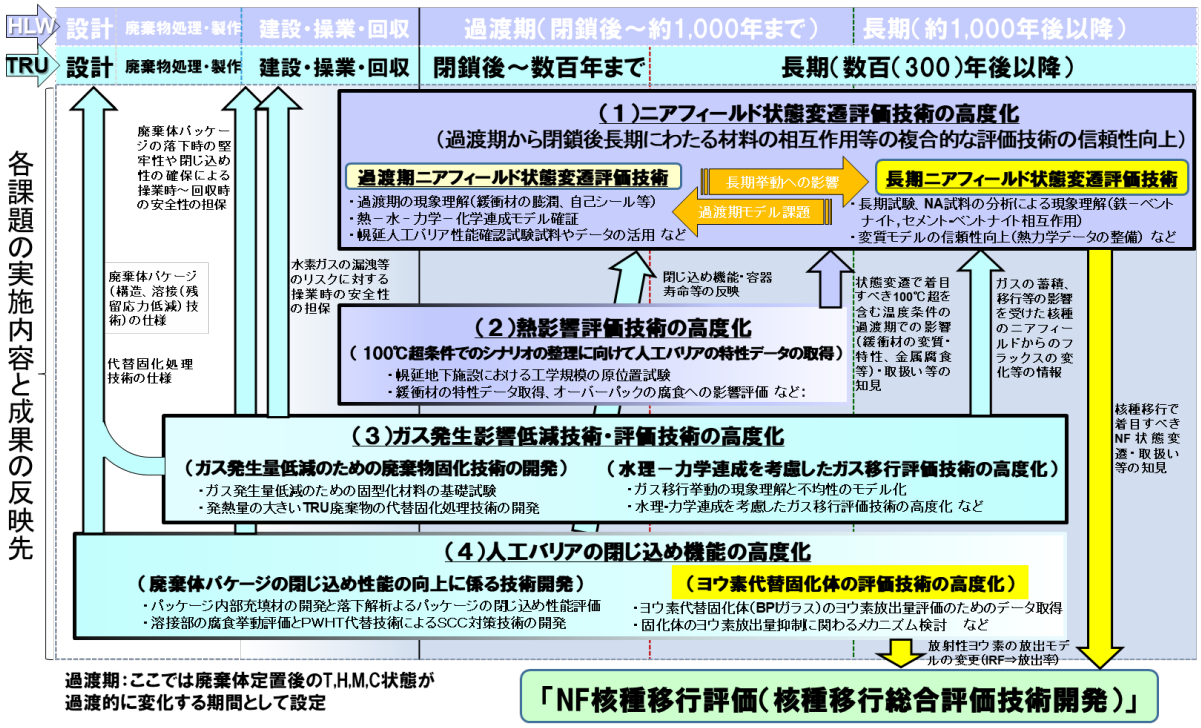


図 1-2　時間スケールに対する各実施項目と成果の反映先の関係

①　ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化

過渡期における状態変遷評価技術として、処分施設内への地下水の浸潤に伴う緩衝材の膨潤による緩衝材と岩盤の間隙への自己シールについて、緩衝材部位の不均質性や安定性に対する理解を深め物質移行に関わる解析的評価に内在する不確実性の低減を図る。また、過渡期の炭素鋼-ベントナイトの相互作用について、室内試験の実施により現象理解を進める。一方、過渡期終了後から長期における状態変遷評価技術については、炭素鋼オーバーパックの腐食、先進セメント（低アルカリ性セメントの一つであるフライアッシュ高含シリカフュームセメント：HFSC）の変質、炭素鋼－ベントナイト及びセメント－ベントナイトの相互作用について、長期室内実験やナチュラルアナログ、幌延地下研究施設において得られた試料等に対して、最新の分析技術を適用した現象理解を進めるとともに、「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）」における現象解析モデルの構築での活用も見据え、界面領域での鉱物変遷や物質移行挙動の変化に関するデータの取得を検討する。TRU 廃棄物に含まれる化学物質の影響も考慮しつつ、ニアフィールド構成材料と、それら材料間の相互作用による変遷のモデル化に必要な粘土鉱物やセメント水和物等の熱力学データを温度の影響も考慮可能なように整備し、モデル解析と上記で得られた試験結果との比較によりモデルの信頼性向上を図る。

② 熱－水－力学－化学連成現象評価モデルの確証

過渡期の THMC 連成現象のうち、特に緩衝材の膨潤挙動やそれに伴う埋戻し材への膨出挙動といった力学挙動や海水系地下水環境でのより長期の緩衝材の浸潤挙動に着目した評価技術の妥当性確認を幌延人工バリア性能確認試験の計測データを活用して実施する。オーバーパックの竪置きや横置きなど様々な人工バリア設計の過渡期から長期にわたる力学挙動評価が可能となるように、人工バリアの化学的変遷を考慮した長期力学挙動が解析可能なコード（MACBECE）の 3 次元化を実施した上で、先行事業で対象としていなかった、幌延人工バリア性能確認試験のヒーター加熱後の減熱フェーズも含めたより長期の期間を解析対象とし、既存の THC 連成解析技術と連携した再現解析を実施する。また、ニアフィールドの長期挙動評価の信頼性向上のため、幌延人工バリア性能確認試験に加え、相似則に基づく加速実験である遠心力模型実験を活用した技術開発を行うことで、閉鎖後～冠水期における解析結果の妥当性確認に資するデータの取得を行う。

(2) 熱影響評価技術の高度化

処分サイトの地質環境条件などの様々な制約条件に柔軟に設計で対応するための方策として、処分場設計における緩衝材の制限温度（100 °C）を超えた条件での現象理解とモデルによる評価手法の構築が国際的にも実施されている。このような取り組みでは、100 °C 超を含む温度条件でのニアフィールドで生じる現象の理解を進めながら 100 °C 超を含む温度条件でのシナリオの整理等から進める必要がある。そのうえで、100 °C 超の温度履歴を与えた場合に生じる緩衝材の変質や基本特性の変化を複数年程度の試験データに基づき評価する等の、100 °C 超を想定した際のシナリオ構築に資するための知見を取得していくことが重要である。よって、実際の地下環境で生じる 100 °C 超の温度条件での現象を把握するために幌延地下研究施設を活用した技術開発を行う。

① ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析

緩衝材の温度分布は処分場設計における坑道離間距離、廃棄体ピッチによって変動する。また、ガラス固化体の発熱特性、ニアフィールド構成材料の熱物性、構成要素間のギャップの有無や大きさなどによっても異なると考えられる。よって、緩衝材が 100 °C を超えるケース、そのケースにおける 100 °C 超の領域と温度分布、100 °C を超える期間等を把握するための熱伝導解析を行う。

② 幌延地下施設での 100 °C 超条件における原位置試験

緩衝材は定置後に内側（廃棄体側）から熱を受けて乾燥が進む一方、外側からは地下水が浸潤する状態となった後、発熱量が低下して内側へも地下水の浸潤が進む状態へと変遷することが想定される。このような状態変遷に伴う緩衝材の乾燥収縮と亀裂発生、温度低下後の地下水の浸潤による亀裂の閉塞など自己シール性に係る挙動や熱履歴を与えた場合の透水性等の基本特性の変化などに着目して幌延地下施設での原位置試験を行う。100 °C 以上で加熱した際の緩衝材に生じる現象や、100 °C 以上の温度履歴を経た緩衝材の再冠水挙動等を実際の地下環境で工学的規模にて把握する。

③ 100 °C 超を含む温度条件における緩衝材特性の評価

上記②での原位置試験では工学的規模でのデータ取得が可能であるが、温度、地下水水質、初期飽和度などの試験条件は限定的となる。よって緩衝材が 100 °C を超えるケースを想定した場合の温度や温度分布を考慮して、種々の熱履歴等の条件における緩衝材の膨潤・透水特性や自己シール性を比較的短期の試験データ等に基づき評価する。

(3) ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化

廃棄体近傍のガスの発生は、初期のガス発生量が著しい場合は操業中の安全性への影響が懸念されるが、初期の発生量が少ない場合においても、閉鎖後長期における処分場への蓄圧、緩衝材

の破過現象等に伴い、人工バリアである緩衝材等の変形等による力学安定性の低下やガスによる汚染水の押出しによる核種移行の加速といったニアフィールドの長期性能への影響が懸念され、ガス発生量を低減させる有効な対策を示し、緩衝材へのガス影響を評価できるようにすることが閉鎖後長期のニアフィールドの状態変遷や性能の評価における重要な課題である。そのため、放射線分解ガスの発生量を低減させる廃棄物固化処理技術の開発を実施する。また、より現実的な処分施設へのガス発生による影響評価が可能となるように、水理－力学連成ガス移行評価モデルを高度化する。

① ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発

TRU 廃棄物のうち、とくに高い放射線を放出するグループ 4H に分類される廃棄物においては、現状想定されているセメント系材料による固化処理をした場合、これまでに検討したパッケージ内充填材での放射線分解ガスの発生量低減対策だけでは、その効果が不十分であることが見込まれた。そのため、内圧上昇に伴うガスの漏洩や廃棄体パッケージの閉じ込め性の喪失が操業中の安全性や閉鎖後の放射性核種の移行にも及ぼす影響をより低減させるためには、セメント固化処理の代替技術の開発が必要である。そこで、ガス発生量の低減の可能性のある固型化材料を探索するとともに、グループ 4H の廃棄物の固型化を想定し、固化処理試験による固型化材としての性能の確認や、照射試験によるガス発生量低減効果の確認等を実施し、TRU 廃棄物への適用性を確認し、有効なガス発生量の低減対策を示す。

② 水理－力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化

処分場におけるガスの発生・蓄圧、破過等に伴うニアフィールドへの影響が懸念される事項として、緩衝材等の変形等による人工バリアの力学安定性低下や施設内汚染水の押出しによる核種移行の加速等が挙げられる。そのため、それらの現象を評価できる水理-力学連成を考慮したガス移行評価モデルを構築し、安全評価の信頼性を向上させることが重要である。3 次元的な影響が確認できるガス移行モックアップ試験により、要素試験に比べ低圧で破過すること、また、破過の発生方向や排水量には方向による偏りが確認された。実処分施設においても、施設の形状だけでなく緩衝材の施工継ぎ目や転圧面といった弱部等がガス移行挙動に影響すると考えられ、これら影響を評価可能な現実的なガス移行モデルによる処分施設の安全性の影響評価が重要である。著しい蓄圧を伴わない場合には、破過に伴う緩衝材の大きな変形・破壊には至らず、自己修復性への影響が小さいことが見込まれ､その結果､核種移行への影響も大きくない見通しが得られる。そこで、処分場での安全性を説明するためにもモックアップ試験によって実現象に近いガス移行特性と自己修復性の知見を積み上げ、発生ガスによる処分施設のより現実的な安全性の評価手法を示す。

(4) 人工バリアの閉じ込め機能の高度化

TRU 廃棄物の地層処分では、瞬時放出成分（Instant Release Fraction、以下、IRF という）の影響が短期間に現れること、ならびに地質媒体やバリア材による移行遅延機能が限定的な陰イオン核種の影響が大きいことが、安全評価上の課題となっている。本高度化では、瞬時放出成分の影響抑制のために、容器による閉じ込め性の担保にむけて、熱的制限のある廃棄物に対しても適用可能な、残留応力に起因する応力腐食割れの影響の低減のための廃棄体パッケージ容器の製作技術や内部充填材の開発、ならびに、閉鎖前の操業時の安全性に係る閉じ込め性の担保に向けて、落下時の閉じ込め性を評価するための解析技術の開発を実施する。また、陰イオン核種のうち、IRF でありかつ、バリア材等への収着の見込めないヨウ素への対策技術については、これまでに開発を進めてきた 10 万年間の閉じ込めを見込める固化体を対象に、残された課題である、長期的な性能についての説明が可能な現象の解明とモデル化とに取り組む。

① 廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発

TRU 廃棄物の地層処分の実施にあたり、閉鎖前の操業中や回収時の安全性並びに過渡的な期間の不確実性低減の観点から、操業中に加えて閉鎖後 300 年程度の廃棄体パッケージの閉じ込め性能を担保し、かつ工学的な成立性や安全性の向上を図るために、先行事業では、処分環境下で

の耐食性や構造健全性を考慮した角型容器について、乾燥工程を設けたプレキャスト製のセメント系充填材からのガス発生量の低減と溶接後熱処理（PWHT）による SCC 発生要因となる残留応力の低減を施した実規模大廃棄体パッケージの製作性を確認した。本技術開発では、廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る溶接品質を確認するため、製作した実規模大廃棄体パッケージを解体し、製作後の容器内部の状態を調査・分析するとともに、特定の部位から腐食試験片を切り出し長期腐食挙動を評価する。一方、TRU 廃棄物によっては PWHT による熱裕度が厳しいという課題解決のため、SCC 対策技術として PWHT 以外の残留応力除去技術の開発を実施する。また、ガス発生量を低減し、かつ乾燥工程を必要としない後充填方式での施工が可能な充填材の仕様を示す。さらに、輸送、定置作業での落下事象を想定した解析により、落下時の廃棄体パッケージの閉じ込め性能を評価する。

②　ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化

先行事業において、TRU 廃棄物の地層処分において最も大きい影響を示すヨウ素 129 に対してその影響を低減するための代替固化技術を複数開発し、おのおのの固化技術に対して、10 年程度の浸漬試験の結果に基づいてヨウ素の放出予測モデルを構築した。それらは、短期間の試験結果に基づいて設定したパラメータを用いて、より長期間のヨウ素放出挙動を再現しうることを確認しているが、10 万年に及ぶ長期間の閉じ込め性を信頼性高く説明するためには、その裏付けが必要である。そこで、本高度化においては、鉛－ホウ素－ビスマス－亜鉛系ガラス（BPI ガラス）固化体を対象として、上記予測モデルの妥当性を裏付けるための理論的説明を試みる。具体的には、これまでの検討において、ヨウ素の放出を経験的に設定したパラメータを用いて評価可能としている BPI ガラス固化技術を対象に、上記浸漬試験において観察されたガラスの変質過程が長期にわたって継続することに対して、変質層の分析から、その生成過程を推定するとともに、ガラスに含まれる各元素間の結合の、水和による解離エネルギーに基づく説明を試みる。

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, 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, 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,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, 2023.

2. ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化

2.1. 目的と 5 か年の計画

2.1.1. 目的

地層処分場の閉鎖後長期の安全性をより現実的に評価し、地質環境条件や設計オプション間の性能の比較を可能とするため、シナリオ構築に必要な処分場閉鎖後における地層処分システムの状態の理解が求められている。ニアフィールドは、オーバーパック、緩衝材、セメント系材料、岩盤など複数の材料から構成されており、過渡期から閉鎖後の長期における安全評価では、これらニアフィールドを構成する材料の相互作用等の複合的な現象の理解と評価技術の信頼性向上が必要である。

本課題では、ニアフィールドを構成する材料の相互作用等の複合的な評価技術の信頼性向上を図り、地層処分場の閉鎖後長期の安全性の現実的な評価手法の構築に資することを目的とする。

2.1.2. 5 か年の計画

上記の目的を達成させるため、本課題では、①ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化、②熱－水－力学－化学連成現象評価モデルの確証からなる 2 つのサブタスクを設定し、ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化を進める。後述する第 3 章熱影響評価技術の高度化、第 4 章ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化、第 5 章人工バリアの閉じ込め機能の高度化において得られた成果を踏まえ、ニアフィールド状態変遷の観点から着目すべき知見については、ニアフィールド状態変遷評価技術への統合を目指した検討を進める。2 つのサブタスクの計画の概要を以下に示す。

⑴ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化

過渡期における状態変遷評価技術として、処分施設内への地下水の浸潤に伴う緩衝材の膨潤による緩衝材と岩盤の間隙への自己シールについて、緩衝材部位の不均質性や安定性に対する理解を深め、物質移行に関わる解析的評価に内在する不確実性の低減を図る。また、過渡期の炭素鋼-ベントナイトの相互作用について、室内試験の実施により現象理解を進める。一方、過渡期終了後から長期における状態変遷評価技術については、炭素鋼オーバーパックの腐食、先進セメント（低アルカリ性セメントの一つであるフライアッシュ高含シリカフュームセメント：HFSC)の変質、炭素鋼－ベントナイト及びセメント－ベントナイトの相互作用について、長期室内実験やナチュラルアナログ、幌延地下研究施設において得られた試料等に対して、最新の分析技術を適用した現象理解を進めるとともに、「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）」における現象解析モデルの構築での活用も見据え、界面領域での鉱物変遷や物質移行挙動の変化に関するデータの取得を検討する。TRU 廃棄物に含まれる化学物質の影響も考慮しつつ、ニアフィールド構成材料と、それら材料間の相互作用による変遷のモデル化に必要な粘土鉱物やセメント水和物等の熱力学データを温度の影響も考慮可能なように整備し、モデル解析と上記で得られた試験結果との比較によりモデルの信頼性向上を図る。セメントとベントナイトの接触試験の試料や幌延人工バリア性能確認試験の坑道支保と接触していた埋め戻し材の接触試料等の分析とモデル開発については、日米政府間の民生用原子力研究開発協力にて、米国サンディア国立研究所と連携して実施する。

⑵熱－水－力学－化学連成現象評価モデルの確証

過渡期の THMC 連成現象のうち、特に緩衝材の膨潤挙動やそれに伴う埋戻し材への膨出挙動といった力学挙動や海水系地下水環境でのより長期の緩衝材の浸潤挙動に着目した評価技術の妥

当性確認を幌延人工バリア性能確認試験の計測データを活用して実施する。オーバーパックの竪置きや横置きなど様々な人工バリア設計の過渡期から長期にわたる力学挙動評価が可能となるように、人工バリアの化学的変遷を考慮した長期力学挙動が解析可能なコード(MACBECE)の 3 次元化を実施した上で、先行事業で対象としていなかった、幌延人工バリア性能確認試験のヒーター加熱後の減熱フェーズも含めたより長期の期間を解析対象とし、既存の THC 連成解析技術と連携した再現解析を実施する。また、ニアフィールドの長期挙動評価の信頼性向上のため、幌延人工バリア性能確認試験に加え、相似則に基づく加速実験である遠心力模型実験を活用した技術開発を行うことで、閉鎖後～冠水期における解析結果の妥当性確認に資するデータの取得を行う。

2.2. ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化

2.2.1. 緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価

(1) 背景と目的

地層処分では、オーバーパックの周囲に緩衝材（締固めベントナイト）を定置した際、緩衝材とオーバーパックの間や、緩衝材と周辺岩盤の間などに隙間が残ることが想定される。閉鎖後も緩衝材の周囲に隙間が残り、放射性核種の卓越流路にならないよう、緩衝材の膨潤により閉塞されることが期待されている（NUMO, 2022）。これは自己シール性として緩衝材に求める設計要件の一つとされている。安全評価の対象期間は長期に及ぶため、自己シールにより隙間が閉塞された状態（隙間充填部位）は建設初期のみならず、長期的にも維持される必要がある。

締固めベントナイトの膨潤変形については、これまでに数多くの研究がある（Komine and Ogata, 2004；Li et al. , 2023；山本ほか, 2022）。同一のベントナイトに対して、締固めベントナイトの乾燥密度が高く、拘束圧が低いほど膨潤変形量は大きくなること、一方で、供給される溶液のイオン濃度が高いほど膨潤変形量は小さくなることが知られている。NUMO（2022）のセーフティーケースでは、低拘束圧を作用させた締固めベントナイトの膨潤変形試験結果を用いて、純水条件と海水条件を想定した自己シール性の設計検討を行っている。ここでは、予め想定される隙間相当量を膨潤変形量が上回ることを自己シール性が成立する条件と考えている。この検討においては、緩衝材が膨潤の前後で均質な状態を維持することが前提となっている。また、膨潤により緩衝材と岩盤等が接触した時の物理化学的な状態については言及されていない。

一般に膨潤変形試験では、供試体の膨潤による変位量だけを測定するために、供試体に過剰な水圧は作用させずに実施されることが多いが、原位置の水理条件によっては、高い水圧のもとで緩衝材の浸潤が進む可能性もある。しかし、先行研究では、浸潤時の水圧が膨潤変形挙動に及ぼす影響については整理されていない。また、Villar et al.（2023）は、膨潤変形した締固めベントナイトには乾燥密度の分布が残留することを報告している。Komine and Ogata（2001）では、自己シールによる隙間充填部位に過剰な透水圧が作用すると、ハイドロフラクチュアリングのような現象が起きることから、これを回避するためには膨潤後に壁面に作用する圧力が重要になることが述べられている。これらの先行研究からは、必ずしも均質な状態で自己シールが完了しないこと、それによって膨潤後に壁面に作用する圧力を単純に平均的な乾燥密度から評価できないことが示唆される。さらには、モンモリロナイトのイオン交換や変質が起きることでベントナイトの膨潤性が低下する場合があることも知られている（伊藤・三原, 2005；横山ほか, 2011；Watanabe and Yokoyama, 2018）。このことは、水質条件によってはベントナイト系材料の将来的な化学変質とともに膨潤性が低下し、その結果、隙間部位に対する自己シール性が十分に発揮されない可能性があることを示唆する。したがって、自己シール性を長期的に期待するためには、緩衝材の不均質性に加え、水圧や水質の変動、岩盤の亀裂や変形などの埋設環境の変遷を考慮して、緩衝材の膨潤挙動並びに膨潤後の物理化学的な状態を理解し、設計や性能評価に反映することが重要であると考えられる。

そこで本実施項目では、緩衝材と岩盤等の水理的・化学的な相互作用に着目したベントナイトの状態変化（乾燥密度や交換性陽イオン組成の不均一化）及び膨潤特性変化の理解を通じ、自己シールによる隙間充填部位の安定性（どういった条件であれば自己シール性が発揮され、低透水性を有したまま壁面と密着した状態を維持できるか）を評価することを目的とする。これにより、自己シール性を長期的に満足するための材料仕様や施工条件の整理が進み、移行シナリオや評価パラメータの変遷など核種移行評価に内在する不確実性の低減につながることが期待される。

本実施項目では、材料の初期状態や、埋設環境の変遷を想定した水圧・水質条件のもと、予め隙間を設けた状態で締固めベントナイトを膨潤変形させる室内試験を行う。令和 5 年度は、試験

に用いる試料の基礎物性を測定すると共に、試験環境を整備した。

(2) 実施内容

1) 試料の基礎物性

① 試料及び試験方法

本実施項目では、Na 型ベントナイトとしてクニゲル V1（山形県産、クニミネ工業製：以下、KV と記載）を使用した。KV の基礎物性として、土粒子の密度、鉱物組成、化学組成、浸出イオン量、メチレンブルー吸着量を以下の方法により測定した。特に断りがない限りは、購入した試料をそのまま測定に用いている。

KV の土粒子の密度の測定では、約 3 g の試料をピクノメーターに入れて 110℃で炉乾燥し、乾燥質量を求めた後、イオン交換水を注ぎ入れ、デシケータ内で減圧することにより脱気した。以降の手順は JIS A 1202 に準じた。

KV の鉱物組成は、不定方位試料を用いた X 線回折分析（XRD）により調べた。リガク製の SmartLab を用いて管電圧・管電流：45 kV、30 mA、IS スリット・RS1 スリット・RS2 スリット：1/12°、20 mm、開放、スキャンスピード：5 °/min、スキャンステップ：0.02° の条件で測定した。

KV の化学組成は、蛍光 X 線分析（XRF）により調べた。JIS R 2216 及び宮脇ほか（2010）を参考に、リガク製の ZSX PrimusⅣを用いて、ガラスビード試料に対して測定を行った。ビード作製では、測定対象試料及び標準試料を 110℃で 24 時間乾燥させた後、1050℃で 3 時間の強熱減量を行った。融剤に四ホウ酸リチウム、剥離剤に臭化リチウム水溶液を使用し、試料と融剤の混合割合は 1:10 とした。

KV の浸出イオン量は、80%アルコールで洗浄した試料及び未洗浄の試料について、6%BTM（Benzyltrimethylammonium）溶液を用いた方法（山本ほか, 2022）により測定した。ここでは、洗浄の有無により、可溶性塩等の溶解が結果に及ぼす影響を検討することをねらいとした。誘導結合プラズマ発光分光分析装置（ICP-OES）を用いて Na、K、Ca、Mg、S の濃度を測定した。イオンクロマトグラフを用いて Cl 濃度を測定した。アルカリニティは変曲点法により測定した。また、非晶質シリカなどの非晶質物質の含有量を把握するため、児玉（1995）を参考に、0.1 mol/L の TIRON 溶液を用いた浸出操作も併せて実施した。ここでは、ICP-OES により Si、Al、Fe の濃度を測定した。

KV のメチレンブルー吸着量は、JIS Z 2451 に準じたスポット法と比色法により測定した。なお、メチレンブルー吸着量に関しては、試料のモンモリロナイト含有率を評価するため、クニピア F（クニミネ工業製）についても測定を実施した。

② 結果と考察

KV の土粒子の密度の測定結果を表 2.2-1 に示す。3 回の測定において、土粒子の密度は 2.767～2.776 Mg/m^3 の範囲であり、平均値は 2.771 Mg/m^3 であった。

表 2.2-1 KVの土粒子の密度

	1 回目	2 回目	3 回目
土粒子の密度（Mg/m^3）	2.771	2.767	2.776
平均値（Mg/m^3）	2.771		

KV の鉱物組成は、モンモリロナイト、石英、長石、クリノプチロライト、カルサイト、パイライトであった。KV の化学組成を表 2.2-2 に示す。伊藤ほか（1993）によるクニゲル V1 の分析結果では、X 線回折定性分析でドロマイトがわずかに認められていたが、その点を除くと、ここで得られた鉱物組成並びに化学組成とほぼ一致していた。

表 2.2-2　KVの化学組成（単位wt%）

SiO_2	71.10
TiO_2	0.17
Al_2O_3	13.93
Fe_2O_3	1.93
MnO	0.08
MgO	2.28
CaO	2.10
Na_2O	2.48
K_2O	0.33
P_2O_5	0.04
H_2O（+）	4.84
Total	99.28

※3 回測定の平均値を表示、110℃乾燥基準

本実施項目で使用したベントナイトの浸出イオン量を表 2.2-3 に示す。洗浄の有無によらず、陽イオンに関しては浸出 Na イオン量が最も高く、また、陽イオン量と陰イオン量の差分はほぼ等しかった。洗浄後の試料は洗浄前と比べて浸出 Na イオン量と SO_4 イオン量でそれぞれ 4.0 meq/100g と 1.5 meq/100g だけ小さい値を示した。クニゲル V1 には、硫酸ナトリウム（Na_2SO_4）を主とする可溶性塩が含まれていることが報告されていることから（鈴木ほか, 2007）、これがアルコール洗浄により幾分か除去されたことが推察される。吉川ほか（2022）の方法により、SO_4 イオンが Na_2SO_4 由来、アルカリニティが $CaCO_3$ 由来であると仮定し、これらの溶解に相当する陽イオン量を測定値から差し引くことで、モンモリロナイトの層間陽イオン量を推定した（表 2.2-4）。これによると、層間陽イオンの 92～96%は Na イオンが、2～6%は Ca イオンが占めていると考えられる。鈴木ほか（2005）は、山形県産ベントナイトの水簸試料に対して酢酸アンモニウム溶液による浸出陽イオン量並びに陽イオン交換容量（CEC）の測定を行っている。Na 交換処理を施した後の浸出陽イオン量や、熱分析などの結果をもとに浸出 Ca イオンの大部分はカルサイト由来と推定したうえで、山形県産モンモリロナイトの CEC に占める交換性 Na イオンの割合は 95%と評価している。この値は、本実施項目で推定した層間 Na イオンの割合と整合している。TIRON 溶液による浸出イオン量の測定値を表 2.2-5 に示す。洗浄後試料の方が Si イオン量はやや高い結果ではあったが、アルコール洗浄により非晶質シリカなどが溶解し除去されるようなことは起きていなかったと考えられる。

表 2.2-3　KVの浸出イオン量

洗浄の有無	未洗浄	アルコール洗浄後
Na（meq/100g）	58.7	54.7
Ca（meq/100g）	7.7	8.6
K（meq/100g）	0.6	0.6
Mg（meq/100g）	0.6	0.8
SO_4（meq/100g）	2.4	0.9
Cl（meq/100g）	定量下限値未満	定量下限値未満
アルカリニティ（meq/100g）	6.3	5.2
陽イオン量の合計（meq/100g）	67.6	64.7
陰イオン量の合計（meq/100g）	8.7	6.1
[陽イオン量]－[陰イオン量]　（meq/100g）	58.9	58.6

※3 回測定の平均値を表示

表 2.2-4　KVの層間陽イオン量の推定値

洗浄の有無	未洗浄	アルコール洗浄後
Na（meq/100g）	56.4	53.7
Ca（meq/100g）	1.4	3.4
K（meq/100g）	0.6	0.6
Mg（meq/100g）	0.6	0.8
陽イオン量の総和（meq/100g）	58.9	58.5

表 2.2-5　KVのTIRON溶液による浸出イオン量

洗浄の有無	未洗浄	アルコール洗浄後
Si（mmol/100g）	9.1	13.1
Al（mmol/100g）	< 2.8	< 3.6
Fe（mmol/100g）	< 2.1	< 1.5

※未洗浄試料については 3 回測定の平均値、洗浄試料は 1 回測定の結果を表示

ベントナイト（KV とクニピア F）のメチレンブルー吸着量を表 2.2-6 に示す。スポット法と比色法により測定した結果はほぼ同等の値となり、KV のメチレンブルー吸着量は 83～84 mmol/100g であることが分かった。ここで、KV のモンモリロナイト含有率を評価するため、モンモリロナイトのメチレンブルー吸着量に対するベントナイトのメチレンブルー吸着量の比としてモンモリロナイト含有率を定義する。クニピア F はほぼモンモリロナイトにより構成されるため、これのメチレンブルー吸着量をモンモリロナイトのそれと同等とみなすと、KV のモンモリロナイト含有率は 56%と推定された。

表 2.2-6　KVのメチレンブルー吸着量

試料	メチレンブルー吸着量（mmol/100g）	
	スポット法	比色法
クニゲル V1	83	84
クニピア F	147	151

※2 回測定の平均値を表示

2)　自己シール試験

①　自己シール試験の概要

処分施設の閉鎖後は、地下水が緩衝材に侵入し（再冠水）、緩衝材周辺の隙間は自己シールにより閉塞することが期待されている。この時、原位置の水理条件によっては、比較的高い水圧環境となる可能性がある。また、地下水の組成に応じて、モンモリロナイトのイオン交換反応が生じることが考えられる。再冠水後には、地下水の組成が変化する可能性もある。緩衝材の自己シール性の発揮や、その中長期的な維持に対するこれらの影響を把握するためには、異なる試験条件における自己シールの過程を観察することや、試験後の物理化学的な状態の分布を調べることが必要である。

令和 5 年度は、自己シールの過程や物理化学的な状態分布を観察可能な試験環境を整備し、評価手法を検討した。自己シール試験装置の概略図を図 2.2-1 に、その外観を図 2.2-2 に示す。自己シール過程を把握するため、装置の外部から供試体の膨潤挙動を観察し、密度分布の変化を X 線 CT 撮影により評価できるよう、試験装置は、外部から目視可能かつ低密度である透明樹脂製とした。また、装置の上下板及びセル側面に圧力計を設置した。供試体の寸法は、直径 60 mm、高さは試験条件に応じて変更可能であり、最大 40 mm である。

以上の検討より、次年度から実施する自己シール試験の試験手順の概略図（フロー）を図 2.2-3 に示す。本試験では、供試体上部に任意の隙間を設け、上部隙間に通水した際の供試体の膨潤挙動を調べる。具体的には、膨潤変形過程の鉛直圧及び側方圧を測定するとともに、外部から一定間隔で写真撮影を行うことで、膨潤変形の進行の程度や、発生する圧力を調べる予定である。また、X 線 CT 撮影を随時実施することで、供試体内部の湿潤密度分布の経時変化を調べることを予定している。各圧力が平衡状態に至った後、供試体を分割し、密度や浸出陽イオン組成などの分布を調べるために分析を実施する予定である。

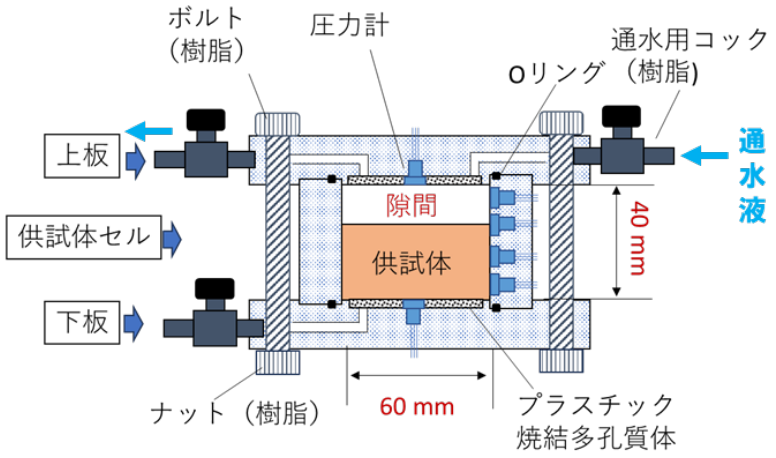
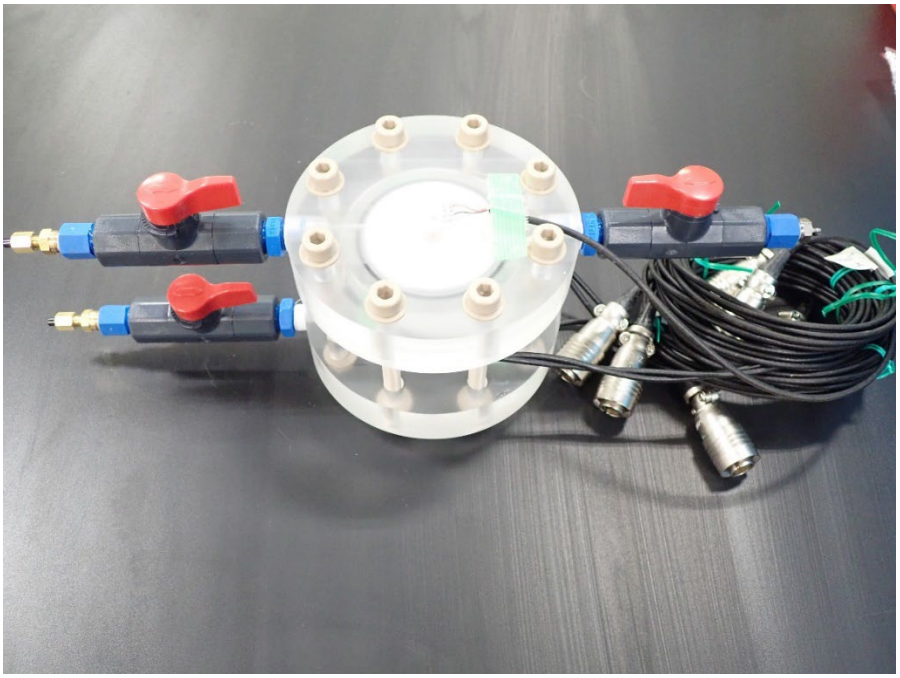
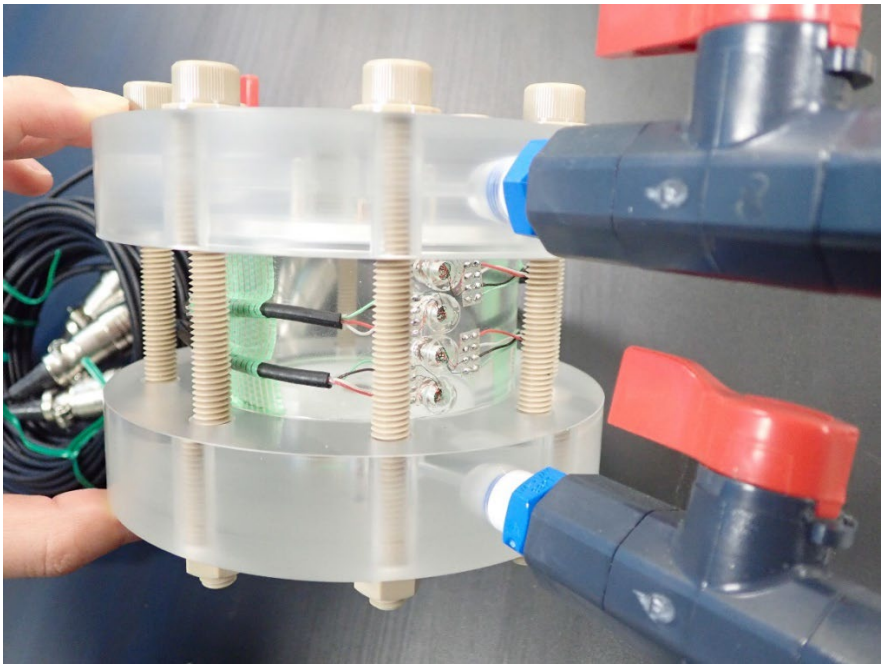


図 2.2-1　自己シール試験装置の概略図



全景



側部

図 2.2-2　自己シール試験装置の外観

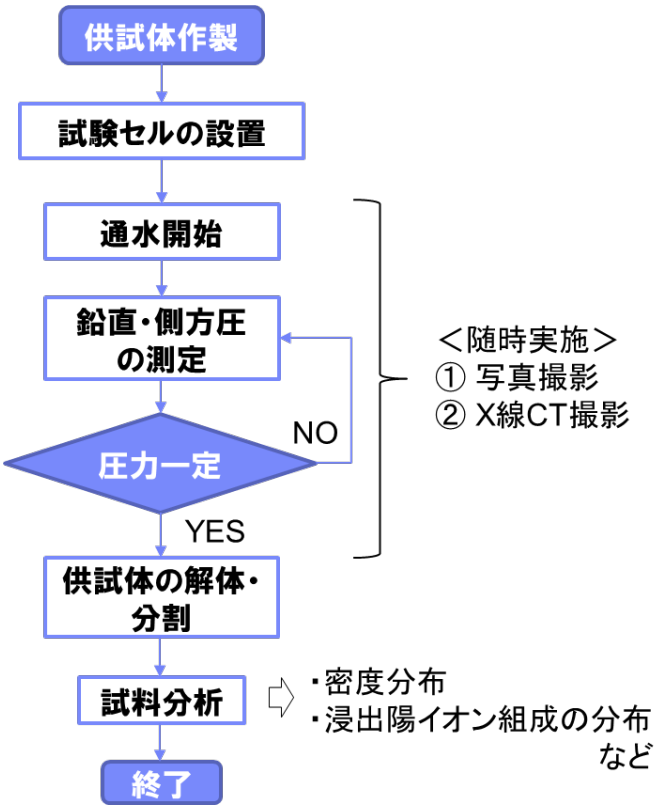


図 2.2-3　自己シール試験の手順の概略図（フロー）

② 乾燥密度の直接測定に関する検討

自己シール試験では、膨潤後の供試体に乾燥密度の分布が生じていることが予想される。そのため、供試体各部位の乾燥密度を測定する方法が必要である。X 線 CT により供試体の湿潤密度分布を評価し、これを乾燥密度に換算する方法が一つである。CT 値と湿潤密度には相関があり、湿潤密度は飽和度と乾燥密度により定義される（高山ほか, 2022）。そのため、例えば供試体全体が飽和しておらず、飽和度が不明な部位については、湿潤密度から乾燥密度を一意に決めることは難しい。自己シール試験では、試験条件によっては供試体中に不飽和の部位が残ったまま試験を終了することも想定される。そのため、令和 5 年度は、供試体を部分的に切り出し、これの体積と乾燥質量から乾燥密度を評価する方法を検討した。

はじめに KV を用いて、直径 60 mm、高さ 20 mm、乾燥密度 3 通り（1.2 Mg/m^3、1.4 Mg/m^3、1.6 Mg/m^3）となるように、供試体上下の両面からの静的締固めにより供試体を作製した。ステンレス製のセルに供試体を収容し、下部からイオン交換水を給水した。供試体上側から流出水が出たことを確認した後、流入側の流量から透水係数を求めた。この湿潤供試体を供試体リングから脱型し、供試体の寸法と質量を測定した後、通常のカッターまたは超音波カッターを用いて図 2.2-4 に示すように分割した。供試体の上下部について、1/4 角を使って供試体の含水比を速やかに測定し、残りの部位は体積測定に供した。分割する形状に対して測定精度を把握するため、角状と扇状の切り方とした。切り出した試料は、3D スキャナー（REVOPOINT 製 RevopointMINI 3D スキャナー及び Revo Scan 5）を用いて体積測定した。複数の試料に対し、乾燥の影響を極力回避するため、3D スキャンは 1 試料あたり 1 回とした。体積測定後の試料の湿潤質量を測定し、110℃で 24 時間程度炉乾燥することにより、乾燥質量及び含水比を求め、切り出した試料の乾燥密度を計算した。1/4 角の含水比と脱型時の供試体寸法及び質量より、脱型した時の乾燥密度を

求めた。質量測定では最小分解能 0.0001 g の電子天秤を用いた。本実施項目においては、1/4 角から得られた含水比を「代表含水比」、切り出した試料の含水比を「切出し後含水比」と称する。また、一部の試料を用いて、同一試料に対する繰返し測定の精度確認を行い、ここでは 3D スキャンの後にノギスによる体積測定も行った。

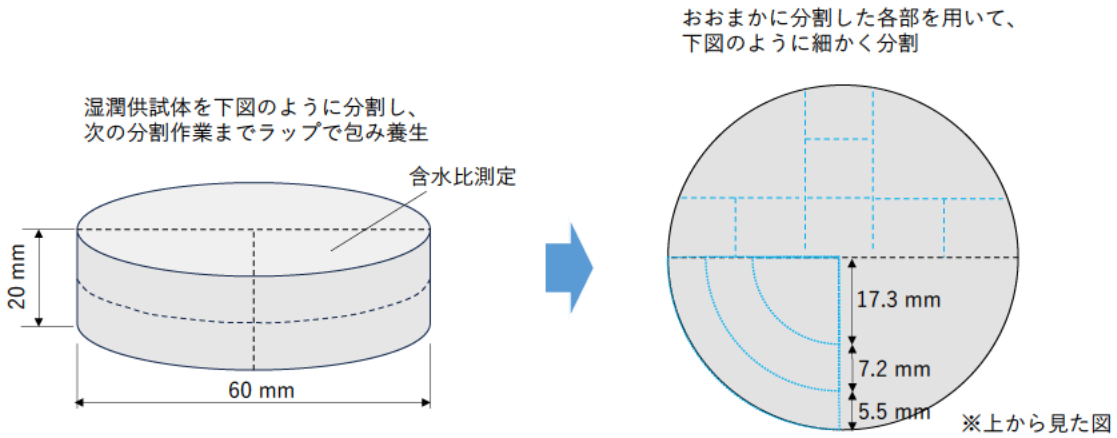


図 2.2-4　供試体の分割イメージ

分割作業に用いた供試体の状態と透水係数を表 2.2-7 に示す。乾燥密度が高いほど透水係数は小さい結果となった。分割作業のために供試体を脱型した際に、乾燥密度 1.6 Mg/m³ の供試体ではわずかに乾燥密度が初期値を下回ったが、著しいリバウンドは生じることなく、作製時とほぼ同じ乾燥密度であることが確認された。分割後に測定した含水比及び飽和度からは、乾燥密度 1.2 Mg/m³ では供試体の上半分の飽和度が下半分の値と比べて低めであることが分かった。乾燥密度 1.4 Mg/m³ と 1.6 Mg/m³ では、供試体の上下で飽和状態に差はほとんどないことが分かった。

表 2.2-7　分割作業に用いた供試体の状態と流入側の流量から算出した透水係数

試料	初期含水比 (%)	作製時の乾燥密度 (Mg/m³)	透水係数 (m/s)	通水後脱型した時の乾燥密度 (Mg/m³)	通水後の含水比 (%)	通水後の飽和度 (%)
クニゲル V1	9.6	1.20	6.6×10^{-13}	1.21	上半分：41.9 下半分：50.3	上半分：94.4 下半分：102.4
	9.6	1.40	4.7×10^{-13}	1.40	上半分：33.5 下半分：35.2	上半分：96.7 下半分：98.9
	9.6	1.60	1.6×10^{-13}	1.58	上半分：26.0 下半分：26.1	上半分：96.4 下半分：96.5

はじめに、乾燥密度 1.6 Mg/m³ の供試体の一部を用いて、繰返し測定による測定精度を調べた結果を述べる。表 2.2-8 に示すように、3D スキャンを 3 回繰り返した前後においては、試料の質量差は 0.02～0.03 g 以内であり、ほとんど乾燥が生じていないことを確かめた。3D スキャンによる体積測定では、切出し寸法によらず変動係数は 0.01 であった。乾燥密度についても変動係数はいずれの場合も 0.01 であった。また、ノギス測定で求めた体積は、3D スキャンによる測定値と比べて-33～+12 mm³ の範囲であった。これを乾燥密度の差にすると-0.02～+0.02 Mg/m³ の

範囲となった。

供試体全体の乾燥密度は脱型時で 1.58 Mg/m³ であった。この値と切り出した試料の乾燥密度を比較すると次のようになる。いずれのケースでも供試体全体の乾燥密度より高い値が算出されたものの、試料の体積が最大の 2,043 mm³ であった試料、すなわち、供試体から上下一体（厚さ 20 mm）で切り出した試料では、3D スキャンとノギス測定に基づく乾燥密度は、供試体全体の乾燥密度と 0.03 Mg/m³ 以内の差で一致した。供試体下半分から切り出した試料に関しては、3D スキャンとノギス測定に基づく乾燥密度が、供試体全体の乾燥密度と 0.06～0.08 Mg/m³ の差となった。棚井ほか（2010）によると、ベントナイトの静的締固めでは、圧縮成型方法によって供試体内に乾燥密度の分布が形成されることが報告されている。例えば、本実施項目で実施した方法と同じような上下面圧縮においては、全体の乾燥密度を 1.6 Mg/m³ とした時、乾燥密度のばらつきはおおよそ 1.4～1.7 Mg/m³ の範囲にあり、供試体中央部ではほぼ目標の乾燥密度に近づく場合や、特に乾燥密度が高い部分が圧縮面あるいはその反対面のどちらかに近い位置に生じる場合があったようである。供試体の寸法や締固め治具の違いもあるため単純な比較はできないものの、供試体下半分で実際に乾燥密度が高くなっていた可能性も考えられる。初期の乾燥密度分布は、本試験において把握しておくことが重要である。最後に、供試体の上半分から切り出した試料に関しては、3D スキャンはノギス測定より乾燥密度を小さく評価し、全体の乾燥密度との差は 0.05～0.07 Mg/m³ であり、供試体下半分と同等もしくは僅かに小さい結果であった。

供試体中の正確な乾燥密度分布が不明である点で乾燥密度の比較が困難ではあったが、切り出した試料の体積によらず、データのばらつきは同程度であることが分かった。乾燥密度の測定精度は、切り出した試料の体積や形状にもよると思われるが、乾燥密度 1.6 Mg/m³ に対しておおよそ±0.02 Mg/m³ であると考えられる。

表 2.2-8　3Dスキャン及びノギスを用いた繰返し測定における測定精度

供試体全体の乾燥密度（Mg/m³）		作製時：1.60，脱型時：1.58		
切出し寸法（mm）		約 10×10×10	約 10×10×10	約 10×10×20
切出し部位		供試体上半分	供試体下半分	上下一体
3D スキャン前後の質量差（g）		0.016	0.016	0.027
3D スキャンによる体積（mm³）	平均値	893	1,073	2,043
	標準偏差	8	13	13
	変動係数	0.01	0.01	0.01
3D スキャンに基づく乾燥密度（Mg/m³）	平均値	1.63	1.66	1.61
	標準偏差	0.02	0.02	0.01
	変動係数	0.01	0.01	0.01
ノギス測定による体積（mm³）		881	1,089	2,076
ノギス測定に基づく乾燥密度（Mg/m³）		1.65	1.64	1.59
3D スキャンとノギス測定の差	体積（mm³）	12	-16	-33
	乾燥密度（Mg/m³）	-0.02	0.02	0.02

※繰返し測定回数は 3 回

乾燥密度 1.2、1.4、1.6 Mg/m³ の供試体について、角状または扇状に切り出した試料の含水比並びに乾燥密度の測定結果を以下に示す。はじめに、含水比の測定結果を表 2.2-9 及び表 2.2-10 に示す。代表含水比と比べると切出し含水比は 1～3%低い値を示しており、切出しと 3D スキャンを行っている間に試料は乾燥していたことが分かった。また、扇状の試料では角状の試料と比

べて切出し後含水比が低いことが多かった。扇状の試料では、先に切り出した中心部分の含水比が高く、一方で外周部分の含水比は低いことも確認された。扇状の試料では切出し面が大きいため、切出しに要する時間が長くなることや蒸発が生じやすいことが理由で、含水比の低下が顕著であったと考えられる。試料の代表含水比に対する切出し後含水比の比と乾燥密度の関係を図 2.2-5 に示す。供試体全体の各乾燥密度及び各供試体部位について、両者に有意な相関は認められなかった。仮に、供試体作製時に乾燥密度の分布が形成されていなかったのであれば、今回の測定において、含水比低下による乾燥収縮が原因となって乾燥密度の差が試料間で生じていた可能性は小さいと考えられる。

表 2.2-9　含水比及び乾燥密度の測定結果一覧

供試体全体の乾燥密度 (Mg/m^3)	供試体部位	代表含水比 (%)	切出し形状	位置・切り出し順番	切出し後含水比(%)	体積 (mm^3)	乾燥密度 (Mg/m^3)
作製時 1.20 脱型時 1.20	上半分	41.9	角状	端・7	39.3	1,078	1.31
				中間・6	40.6	981	1.41
				端・5	39.2	1,050	1.33
				中間・4	40.3	1,159	1.28
				中央・3	39.8	1,169	1.25
				中間・2	39.4	1,257	1.26
				端・1	39.2	1,299	1.31
	下半分	50.3		端・7	47.2	1,166	1.26
				中間・6	48.6	1,237	1.18
				端・5	46.2	1,674	1.21
				中間・4	45.4	573	1.10
				中央・3	47.3	1,146	1.13
				中間・2	47.7	1,235	1.15
				端・1	46.2	1,174	1.18
	上半分	41.9	扇状	中心・1	39.8	2,256	1.29
				中央・2	38.3	2,131	1.28
				外周・3	37.5	2,201	1.37
	下半分	50.3		中心・1	48.3	2,120	1.20
				中央・2	47.0	2,282	1.17
				外周・3	45.9	2,311	1.29

（表 2.2-9の続き）

供試体全体の乾燥密度 (Mg/m³)	供試体部位	代表含水比 (%)	切出し形状	位置・切り出し順番	切出し後含水比(%)	体積 (mm³)	乾燥密度 (Mg/m³)
作製時 1.40 脱型時 1.41	上半分	33.5	角状	端・1	31.7	929	1.48
				中間・2	31.4	881	1.47
				端・4	31.9	1,230	1.49
				中間・5	31.8	1,204	1.48
				中央・3	31.4	816	1.49
				中間・6	31.8	1,149	1.49
				端・7	31.9	1,341	1.48
	下半分	35.2		端・1	33.4	1,142	1.51
				中間・2	33.7	997	1.40
				端・4	33.4	1,313	1.47
				中間・5	34.4	1,385	1.47
				中央・3	33.9	889	1.43
				中間・6	33.9	1,343	1.47
				端・7	33.4	1,524	1.50
	上半分	33.5	扇状	中心・1	31.5	2,209	1.46
				中央・2	30.6	2,088	1.46
				外周・3	30.2	2,285	1.48
	下半分	35.2		中心・1	33.3	2,241	1.44
				中央・2	31.9	2,077	1.45
				外周・3	31.1	2,306	1.49
作製時 1.60 脱型時 1.58	上半分	26.0	角状	端・1	24.6	1,098	1.64
				中間・2	24.9	1,150	1.50
				端・4	24.7	1,106	1.59
				中間・5	25.3	1,236	1.57
				中央・3	24.9	924	1.57
				中間・6	25.0	1,307	1.60
				端・7	24.7	1,225	1.60
	下半分	26.1		端・1	25.2	1,236	1.62
				中間・2	25.1	1,134	1.61
				端・4	25.1	1,115	1.66
				中間・5	25.4	1,287	1.63
				中央・3	24.6	1,007	1.65
				中間・6	25.4	1,161	1.62
				端・7	25.1	1,382	1.61
	上半分	26.0	扇状	中心・1	24.0	1,844	1.57
				中央・2	22.9	2,137	1.58
				外周・3	22.4	2,351	1.66
	下半分	26.1		中心・1	23.8	2,382	1.65
				中央・2	22.6	2,117	1.62
				外周・3	22.2	2,455	1.65

表 2.2-10　切り出した試料の含水比

供試体全体の乾燥密度 (Mg/m³)	切出し形状	供試体部位	代表含水比（%）	切出し後含水比の平均値（%）	代表含水比と切出し後含水比の平均値の差分（%）	測定点数
作製時 1.20 脱型時 1.20	角状	上半分	41.9	39.7	2.2	7
		下半分	50.3	46.9	3.4	7
	扇状	上半分	41.9	38.5	3.4	3
		下半分	50.3	47.1	3.2	3
作製時 1.40 脱型時 1.41	角状	上半分	33.5	31.7	1.8	7
		下半分	35.2	33.7	1.5	7
	扇状	上半分	33.5	30.8	2.7	3
		下半分	35.2	32.1	3.1	3
作製時 1.60 脱型時 1.58	角状	上半分	26.0	24.9	1.1	7
		下半分	26.1	25.1	1.0	7
	扇状	上半分	26.0	23.1	2.9	3
		下半分	26.1	22.9	3.2	3

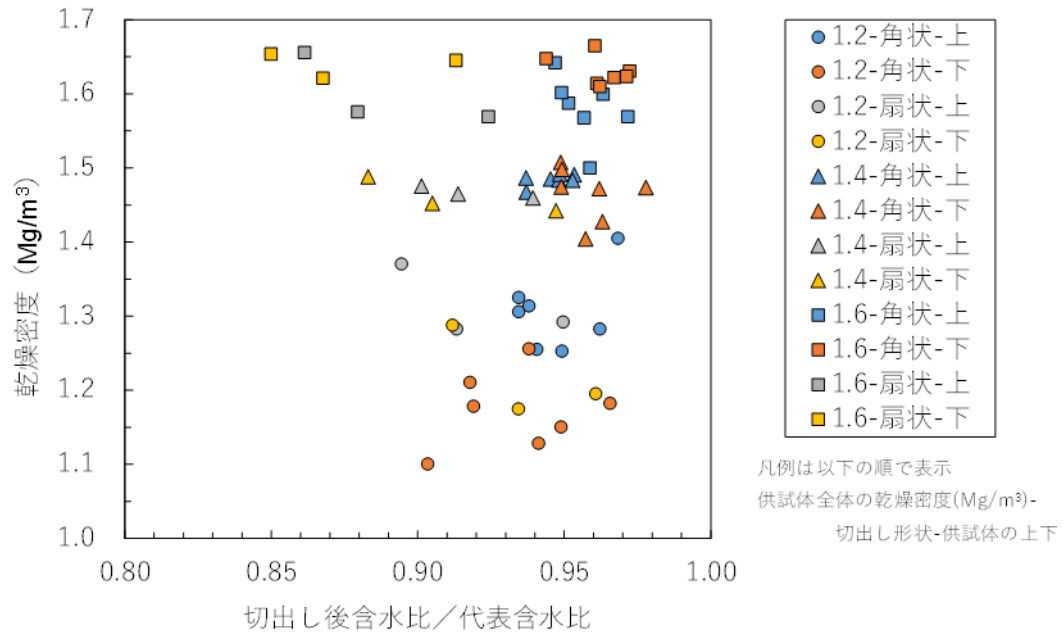


図 2.2-5　切り出した試料の乾燥密度と含水比の関係

次に、切り出した試料の乾燥密度とその統計値を表 2.2-11 に示す。データのばらつきに着目すると、供試体全体の乾燥密度 1.2 Mg/m³ の扇状でデータのばらつきがやや大きい点を除くと、総じて変動係数は 0.04 以下、標準偏差は 0.05 Mg/m³ 以下の範囲であった。低密度試料は柔らかいため、扇状の切出しでは、形状を維持しにくかったことが原因と考えられる。

切り出した試料の乾燥密度の平均値は、一点を除いて、供試体全体の乾燥密度より高い値を示

した。角状と扇状、あるいは、供試体の上下で乾燥密度の大小関係に傾向は認められなかった。供試体の上下に関しては、先述した通り、厚さ方向の乾燥密度分布が形成されていた可能性も考えられるが、上下ともに大きな値を示すことが多かった。なお、扇状試料の外周部分や端部から採取した角状試料では乾燥密度が高めに算出される場合が多かったことから、供試体作製時、締固めモールドの壁際では高密度になるような密度分布が形成されていた可能性も考えられる。

供試体全体と切り出した試料における乾燥密度の差分を図 2.2-6 に示す。ここでは、供試体全体の乾燥密度として、応力開放によるリバウンドが生じていたことを考慮して、作製時と脱型時で小さい方の乾燥密度を用いた。この結果から、供試体全体の乾燥密度が 1.2 Mg/m^3 では、切り出した部位の乾燥密度を 0.1 Mg/m^3 ほど過大に評価してしまう可能性がある。供試体全体の乾燥密度が高いほど､切り出した部位の乾燥密度を過大に評価する程度は軽減される傾向にあったが、それでも最大で 0.05 Mg/m^3 ほどの差はあった。供試体全体の乾燥密度が 1.2 Mg/m^3 の供試体下部から角状に切り出した試料については、平均値として、切り出した部位の乾燥密度を過小評価する結果となった。供試体上部が高密度になったことで、供試体下部が低密度になった可能性はあるものの、最大値と最小値の差が 0.16 Mg/m^3 と大きかったことから、切り出した試料の形状などが原因で測定値が大きくばらついた結果であると思われる。

今回、ほぼ全てのケースで乾燥密度を過大評価することが示唆された。乾燥密度を算出するための乾燥質量は、切り出した試料を全量炉乾燥して十分な精度の電子天秤で測定しているため影響要因から外すと、3D スキャンによる体積測定が乾燥密度の過大評価の一つの原因になっていると考えられる。仮に供試体全体の乾燥密度を正とした場合（乾燥密度の分布が生じていないと仮定した場合)、過大評価された試料について、正しい乾燥密度になるための体積を逆算すると、それは今回測定された体積に対して平均的には約 1.05 倍、最大では 1.17 倍の値が必要だったことになる。1.05 倍の体積変化は、立方体を仮定して 1 辺あたりの変化量に換算すると 0.2 mm ほどである。3D スキャンの処理過程では、試料の端部や微細な凹凸箇所で測点が欠ける場合があることにより、体積が過小に評価されていると考えられる。加えて、切り出し作業でわずかに試料が体積圧縮を受ける場合があることが、体積測定の誤差につながったことも考えられる。試料の切り出しにおける寸法や形状、画像処理方法については、精度向上のために更なる検討が必要と考えられる。また、供試体の初期状態として乾燥密度分布を把握することも課題であり、X 線 CT スキャンとの併用が有効であると考えられる。

表 2.2-11　切り出した試料の乾燥密度

供試体全体の乾燥密度 (Mg/m³)	切出し形状	供試体部位	切り出した試料の乾燥密度				測定点数
			平均値 (Mg/m³)	最大値-最小値 (Mg/m³)	標準偏差 (Mg/m³)	変動係数	
作製時 1.20 脱型時 1.20	角状	上半分	1.31	0.15	0.05	0.04	7
		下半分	1.17	0.16	0.05	0.04	7
	扇状	上半分	1.32	0.09	0.05	0.04	3
		下半分	1.22	0.11	0.06	0.05	3
作製時 1.40 脱型時 1.41	角状	上半分	1.48	0.02	0.01	0.01	7
		下半分	1.47	0.10	0.04	0.03	7
	扇状	上半分	1.47	0.02	0.01	0.01	3
		下半分	1.46	0.05	0.02	0.02	3
作製時 1.60 脱型時 1.58	角状	上半分	1.58	0.14	0.04	0.03	7
		下半分	1.63	0.06	0.02	0.01	7
	扇状	上半分	1.60	0.09	0.05	0.03	3
		下半分	1.64	0.03	0.02	0.01	3

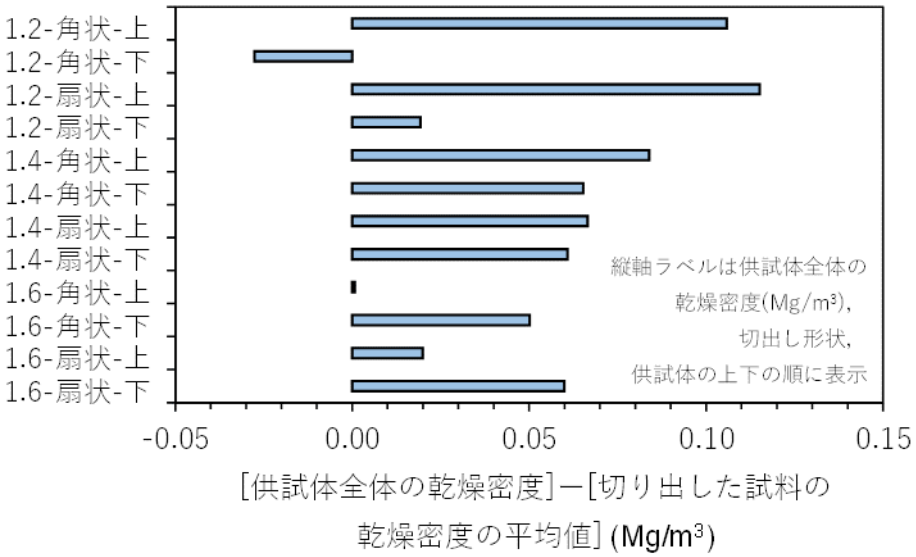


図 2.2-6　供試体全体と切り出した試料における乾燥密度の差

(3) 成果と今後の課題

令和 5 年度は、膨潤特性に関連するベントナイト試料の基礎物性を得るため、Na 型ベントナイト（KV）の土粒子の密度、鉱物組成、化学組成、浸出イオン量、メチレンブルー吸着量を測定した。浸出イオン量からはモンモリロナイトの層間陽イオン組成を、メチレンブルー吸着量からはモンモリロナイト含有率を評価した。また、自己シール試験のための試験環境を整備した。さらに、供試体の乾燥密度分布を把握するため、部分的に切り出した試料の体積と乾燥質量から乾燥密度を求める方法を検討した。以上の検討をもとに、次年度からは、自己シール試験を実施するとともに、試験前後の試料及び供試体の基礎物性や乾燥密度分布を調べる予定である。今後、様々な隙間量、供試体仕様、水理・水質などの条件のもと、自己シール試験のデータを取得し、さらに自己シールした時の物理化学的な状態についての知見を取得することは重要と考えられる。

2.2.2. 炭素鋼－ベントナイトの相互作用

(1) 背景と目的

緩衝材は、ガラス固化体への地下水の接触と核種の移行を抑制するために、止水性、コロイドろ過性、核種収着性などの多くの機能が期待されており、これらが長期にわたって健全に保持されることが要求される。これらの機能は、主要構成鉱物であるモンモリロナイトの特性により発現するため、非膨潤性粘土鉱物への鉱物学的変質や二次鉱物の沈殿（粒子間の結合を伴う場合はセメンテーション）、モンモリロナイトのイオン型の変化などの変質が生じた場合、機能の低下などの影響を被る可能性がある。

炭素鋼－ベントナイト相互作用は、これらの変質を引き起こす可能性のある現象の一つとされている（原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2012）。モンモリロナイトの非膨潤性粘土鉱物への鉱物学的変質は、これまでバッチ式の試験において確認されているが（例えば、Guillaume et al., 2004；Lantenois et al., 2005；Perronnet et al., 2008）、圧縮条件の緩衝材が炭素鋼と接触する条件の試験においては、モンモリロナイトの非膨潤性粘土鉱物への変質が観察された報告例はない（例えば、Müller-Vonmoos et al., 1991；Carlson et al., 2007；Ishidera et al., 2008；Schelegel et al., 2008；笹本ほか, 2010；de Combarieu et al., 2011；Smart et al., 2017；Schelegel et al., 2019）。腐食生成物の沈殿は、室内試験や原位置試験、土壌中から出土した考古学的鉄製品で確認されており（例えば、Bellot-Gurlet et al., 2009；Hadi et al.,2019；Leupin et al., 2021；松井, 2009；Neff et al., 2010；原子力発電環境整備機構・日本原子力研究開発機構, 2011；Leon et al., 2017；Wersin et al., 2023）、低酸素条件ではシデライト、酸化的な条件ではゲータイトなどの検出が報告されている。また、モンモリロナイトの Fe 型化についても、室内試験や原位置試験、ナチュラルアナログ試料において確認されている（例えば、Kamei et al., 1999；Leupin et al., 2021；Ueno et al., 2011；陶山ほか, 2004）

令和 5 年度は、平成 14 年度に開始し，試験期間 21 年間が経過した「超長期試験」を対象に、顕微ラマン分光装置や各種電子顕微鏡等を用いた分析を行い、腐食生成物による緩衝材間隙の閉塞と腐食速度の低下の関係など、相互作用メカニズムの理解を進めた。

(2) 実施内容

1) 長期浸漬試験

① 試験の概要

処分場が閉鎖され緩衝材が飽和した段階においても坑道中には酸素が残留している可能性が考えられる。酸素が溶存した地下水が炭素鋼オーバーパックと接触した場合、低酸素濃度環境下よりも腐食速度は早くなるとともに腐食挙動が変化する可能性がある、しかしながら、オーバーパック外側には緩衝材の設置が計画されており、飽和した緩衝材には止水性をはじめ物質移動抑制能があるため、炭素銅オーバーパック表面にはほとんど酸素が供給されず、処分場閉鎖後初期段階にオーバーパックの表面近傍では低酸素濃度環境が達成されると考えられる。このような飽和した緩衝材中での炭素鋼の腐食挙動に関する長期腐食データを取得するための試験手法を検討し、溶液の交換、補給などメンテナンスの不要な試験容器を用いた超長期の浸漬試験「超長期試験」を実施した（和田ほか, 2002）。

令和 5 年度は、浸漬期間 21 年の試験の解体を実施するとともに、長期間緩衝材中に埋設されていた炭素鋼の腐食量および腐食生成物の分析、炭素鋼試験片に長期間接触していた緩衝材の変質状態の分析を実施した。

② 試験手順

チタン製のカラム内に炭素鋼試験片と緩衝材を入れ、緩衝材が所定の密度になるように圧縮成型した。テフロン容器にチタン製のカラムと試験溶液の人工海水を入れた。外側試験容器の胴体部内シリコン製台座にテフロン容器を固定して、外側試験容器の蓋部をガラス溶着した。外側試験容器の蓋部の細管をガスバーナーで密封溶着し、恒温槽にて試験期間中保管した。試験装置の概要を図 2.2-7 に、試験条件を表 2.2-12 示す。

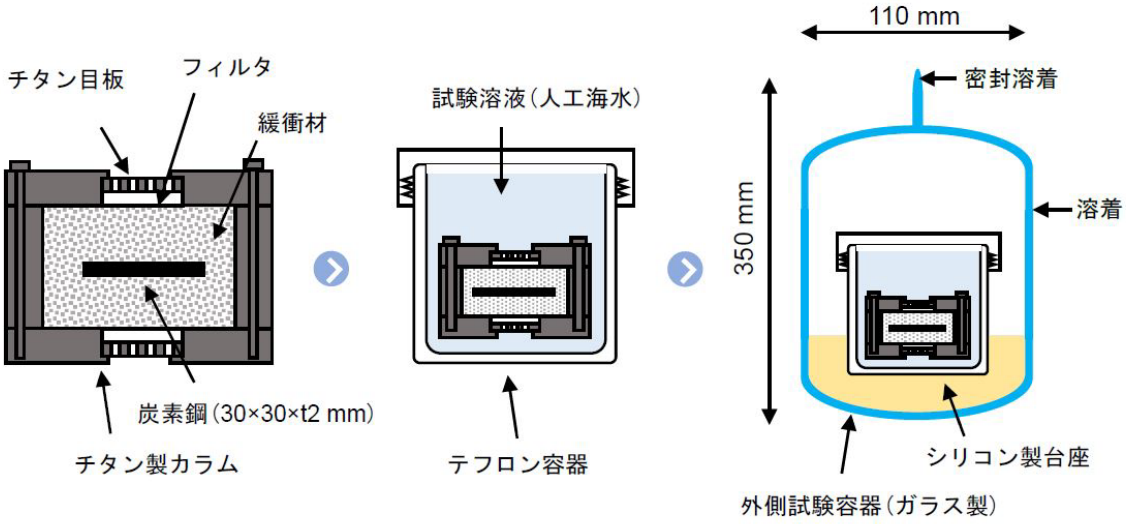


図 2.2-7 試験の概要

表 2.2-12 試験条件

供試材	炭素鋼（SM400B）
試験片表面仕上げ	エメリー#800 仕上げ → アセトン脱脂
試験片形状	30×30×t2 mm
緩衝材	30 wt%ベントナイト（クニゲル V1）＋ 30 wt%ケイ砂混合
緩衝材密度	1.6 Mg/m^3
溶液組成	人工海水（ASTM D-1141-52 に準ずる）
浸漬温度	80 °C
試験期間	21 年

2)　試験試料の分析

①　分析試料及び分析手法

(a)　断面試料の製作

断面試料は、取り出した試料(No.5)を緩衝材に包まれた状態で樹脂埋めして切断し、研磨時に水を使わない乾式研磨法（特許第 5633078 号「乾式研磨法による脆弱試料薄片の作製法」）にて製作した。製作した断面試料写真と模式図を図 2.2-8 に示す。

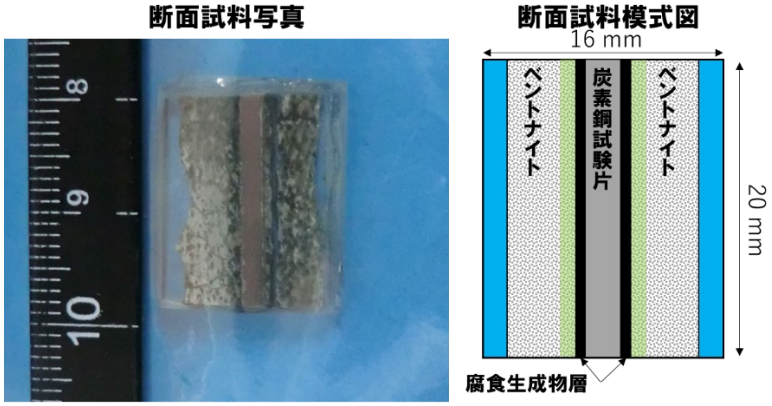


図 2.2-8　断面試料写真と模式図

(b)　X 線回折分析

ベントナイトを除去した試験片(No.6, 7, 8)の表面および試験片(No.6)に付着していたベントナイトを対象に、X 線回折(X-ray Diffraction : XRD)分析を実施した。試料の酸化を防ぐため、分析試料の調製を窒素雰囲気の雰囲気制御グローブボックス内（酸素濃度 1 ppm 以下）で行うとともに、エックス線回折分析の際は内部に窒素ガスを充填した気密試料台に試料を封入した。分析条件を表 2.2-13 に示す。取得したデータの解析には PDIndexer(Seto et al., 2010)を用いた。

表 2.2-13　X線分析分析条件

測定装置	株式会社リガク製エックス線回折装置（SmartLab）	
測定方法	集中法	
測定条件	X 線源	Cu
	管電圧/管電流（出力）	45 kV／200 mA
	ステップ	0.02
	スキャン速度	1 °/min
	スキャン範囲（2θ）	2θ = 2～90°

(c)　微小部 X 線分析

微小部 X 線分析装置（堀場製作所製 XGT 9000Expert）を用い、エネルギー分散型蛍光 X 線分析法（管電圧 30 kV、管電流 1,000 μA）にて広域マッピング（範囲：試料全体）および詳細マッピング（範囲：14 mm×3.5 mm）分析を実施し、透過 X 線像および元素像から試料の元素分布(Al, C, Ca, Cl, Fe, Mg, O, S, Si, Na, K, Mn, Ti)を把握した。

(d)　走査電子顕微鏡分析

走査型電子顕微鏡（日本電子株式会 社製 JSM-7200F）を用い、加速電圧 15 kV にて反射電子像の撮影およびエネルギー分散型 X 線分光(EDS)による組成分析（マッピング分析）を実施した。

なお、観察面はイオンミリング装置（日立ハイテクノロジー社製 IM-3000）を用い、加速電圧 6 - 20 kV の条件で平滑加工処理を施した。観察倍率は 170 倍（低倍率）、1,200 倍（高倍率）とし、170 倍で取得した画像は、汎用的な画像解析ソフトウェアである ImageJ(Schneider et al., 2012)を用いた連結処理を行い、深さ方向（接触面から離れる方向）の濃度分布の把握等に利用した。

(e) 透過型電子顕微鏡分析

集束イオンビーム(FIB)装置（日立ハイテクノロジー社製 NB5000）および冷却装置（日立ハイテクノロジー社製雰囲気遮断冷却ホルダー）を用いて薄膜切片試料を作製した。作製した薄膜切片試料について、透過型電子顕微鏡（日本電子製 JEM-2100F および JEM ARM200F）を用いた観察・分析を行い、モンモリロナイトの変質の有無を確認した。薄膜切片試料作製時の加速電圧は 10 - 40 kV、ステージ温度は約-130 °C である。また、TEM 分析時の加速電圧は 200 kV、取得データは明視野像、電子回折像、元素組成（マッピング分析、点分析、線分析）である。取得したデータの処理には DigitalMicrograph™（Gatan 社）および ReciPro(Seto and Ohtsuka, 2022)を用いた。

(f) 顕微ラマン分光分析

腐食生成物の種類を特定するため、レーザーラマン分光光度計（日本分光株式会社製 NRS-4500）を用いた顕微ラマン分光分析を行った。分析条件を表 2.2-14 に示す。レーザーによる腐食生成物の変質を低減するため、レーザー出力は 2mW 以下とした。取得したラマンスペクトルの解析には CrystalSleuth(Laetsch and Downs, 2006)を用いた。

表 2.2-14 顕微ラマン分光分析分析条件

分析装置	日本分光㈱製NRS-4500	
分析条件	分析法	スポット
	励起波長	532 nm
	レーザー出力	1 mW, 2mW
	スリット	φ34 μm
	対物レンズ	×50, ×100
	グレーティング	900 gr/mm
	観測波数	2,000～100 cm^{-1}
	露光時間	5 s, 60s
	積算回数	1 回
	スポットサイズ	1.5 μmφ

② 分析結果

(a) 外観観察

試験後の試験片の外観を図 2.2-9 に示す。試験片表面には黒色の皮膜が形成していた。一部灰色を呈する箇所は緩衝材が付着したものである。脱スケール後の外観結果は、一部不均一な形態が観察される全面腐食である。

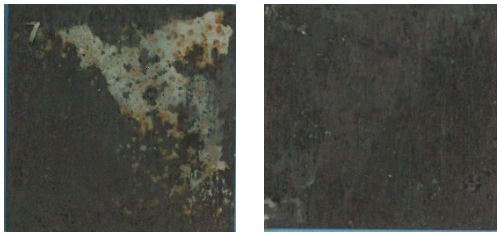
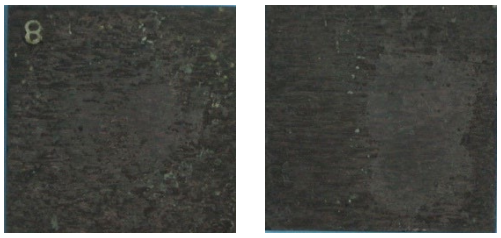
試料	脱スケール前	脱スケール後
No.7		
No.8		

図 2.2-9　試験後の試験片の外観

(b)　　pH 測定

試験溶液および緩衝材の pH 測定を実施した。緩衝材 pH の測定方法は、緩衝材の上にテフロンシートを被せてテフロンシートの上に染み出した溶液が接触しやすいように試薬部分を下にした pH 試験紙を置き、更にテフロンシートを上に被せた。テフロンシートの上に圧縮治具を乗せて圧縮機で溶液が染み出すまで圧縮した。圧縮治具を取り外して pH 試験紙の試薬部分の色の変化より pH を推定した。緩衝材 pH の測定方法を図 2.2-10、試験後の試験溶液および緩衝材 pH 測定結果を表 2.2-14 に示す。

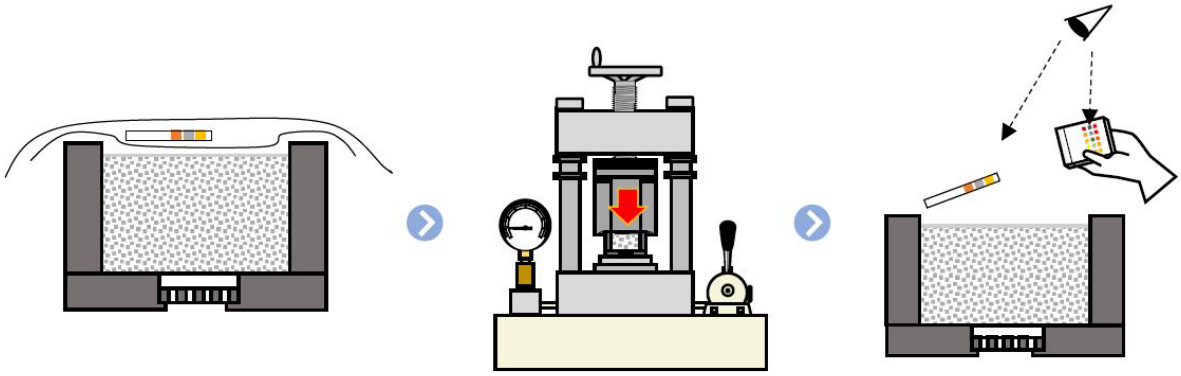


図 2.2-10　緩衝材pHの測定方法

表 2.2-15　試験後の溶液および緩衝材pH測定結果

試料	試験溶液 pH	緩衝材 pH
No.8	6.47（21.8°C）	6.0 ～ 6.5

(c)　　重量測定

腐食試験前後の試験片の重量減少から算出した平均腐食量と平均腐食速度を表 2.2-15 に示す。平均腐食速度は平均腐食量を試験期間で除した値である。また、平均腐食量は，既存の同一試験条件（緩衝材乾燥密度：1.6 Mg/m^3、ケイ砂混合率：30 %、試験温度：80 °C、試験溶液：人工海水）の平均腐食量（鈴木ほか, 2023），緩衝材の乾燥密度条件が異なる谷口ほか(2008)（緩衝材乾燥密度：1.8 Mg/m^3、ケイ砂混合率：0 %、試験温度：80°C、試験溶液：人工海水）の平均腐食量とともに図 2.2-11 に示す。超長期試験の平均腐食量は，鈴木ほか（2023）の 5 年間の腐食量の経時変化に基づくべき乗則モデルの外挿により推定した腐食量（緑色の破線）と概ね一致した。

表 2.2-16　重量減量から算出した腐食量および腐食速度

試料	腐食量(mm)	腐食速度(mm/y)
No.7	2.94×10^{-2}	1.40×10^{-3}
No.8	3.97×10^{-2}	1.89×10^{-3}

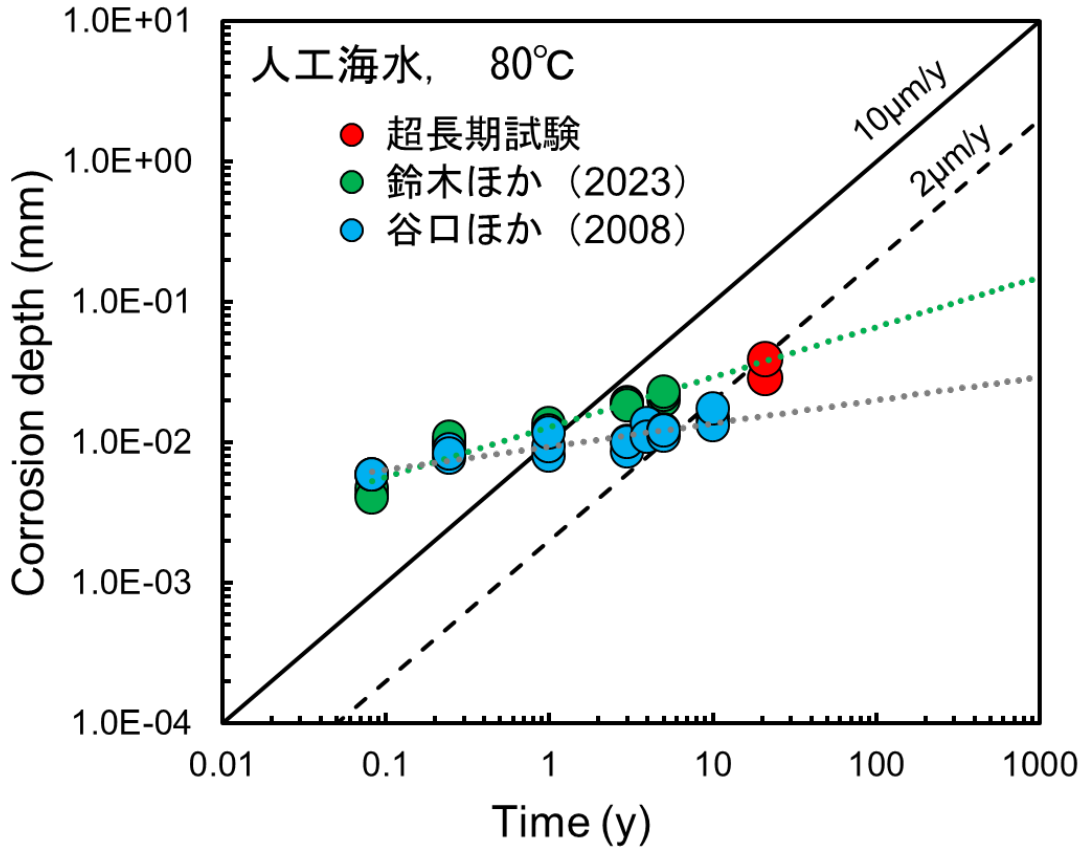


図 2.2-11　腐食量の経時変化

(d)　　XRD 測定

X 線回折結果を図 2.2-12 に示す。従来の結果（鈴木ほか, 2023）と同様に主な腐食生成物としてシデライト($FeCO_3$)が検出された。試験片表面から採取したベントナイトからもシデライトが検出された。いずれの試料もシデライトのピーク位置は標準ピーク（紫色の破線）よりも低角側

にシフトしている。同様なシデライトのピークのシフトは谷口ら(2010)も報告しており、Ca の固溶による影響の可能性があるとしている。

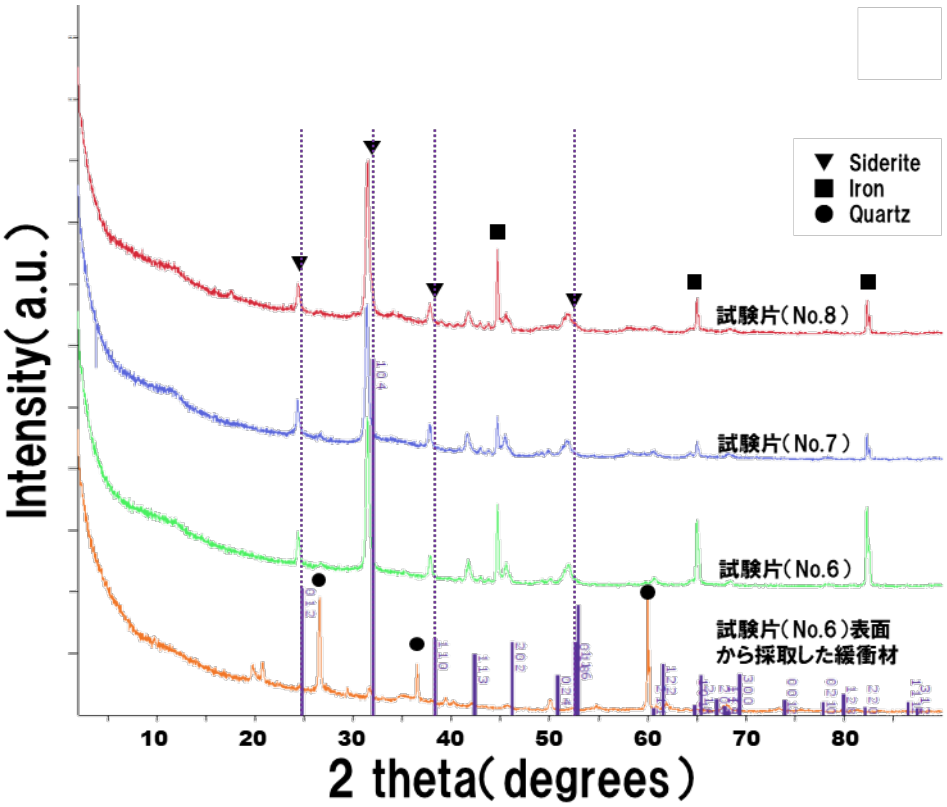


図 2.2-12　XRD測定結果

(e)　　微小部 X 線分析

作製した断面試料の光学像、微小部蛍光 X 線分析による広域元素マッピング像、透過 X 線像（赤線：透過 X 線強度プロファイル）を図 2.2-13、詳細元素マッピング像（Fe マッピング像の赤線は Fe 強度）を図 2.2-14 に示す。図 2.2-13 の透過 X 線像に示した透過 X 線強度プロファイルでは、試験片近傍のベントナイト領域の透過 X 線強度が低下しており、ベントナイト中に沈殿した腐食生成物や Fe 成分の影響により X 線が吸収されていることが示唆される。図 2.2-14 の光学像では、試験片の右端に腐食孔のような凹状の箇所が観察されるが、これは断面試料の製作時に試験片の切断面に生じた変色であり、腐食孔ではない。図 2.2-14 の元素マッピング像の白破線は Al の分布から判定した腐食生成物層とベントナイトの界面である。この界面よりも試験片側には Al はほとんど分布していない。図 2.2-14 の元素マッピング像に白い矢印で例示した位置に湾曲した腐食形態が認められる。図 2.2-15 には湾曲部の領域を拡大した元素マッピング像を示す。Si マッピング像と S マッピング像に示されるように、湾曲部には Si と S が分布している。また、腐食生成物層とベントナイトの界面（白破線）の試験片側の腐食生成物層には Ca が分布しているが、湾曲部に Ca は分布していない。

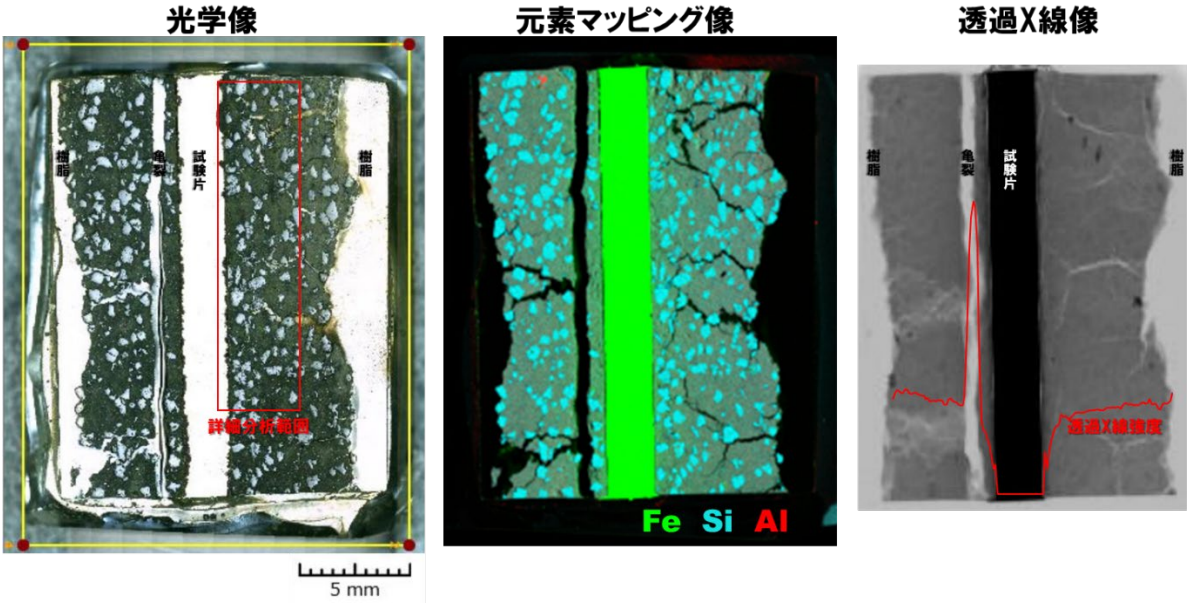


図 2.2-13　断面試料の光学像と広域元素マッピング像および透過X線像

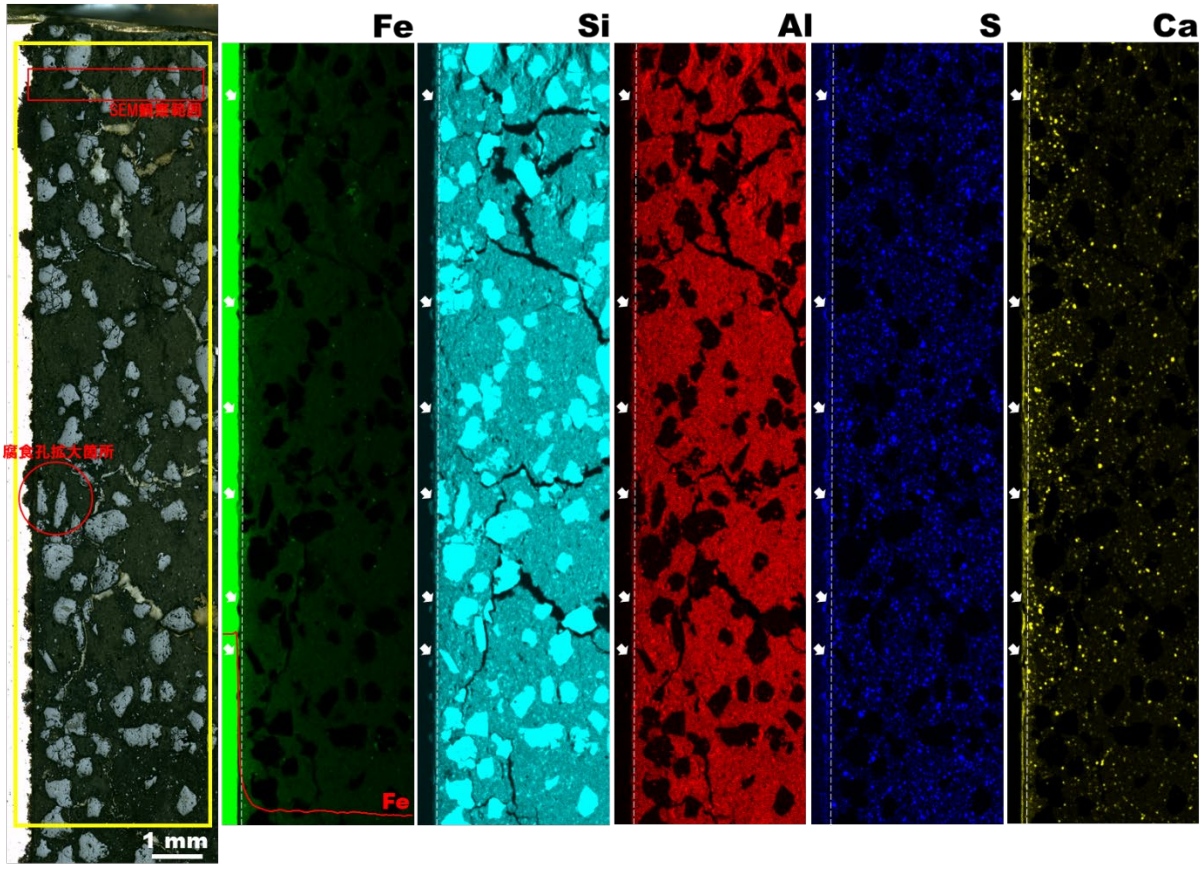


図 2.2-14　断面試料の詳細分析範囲の光学像と詳細元素マッピング像

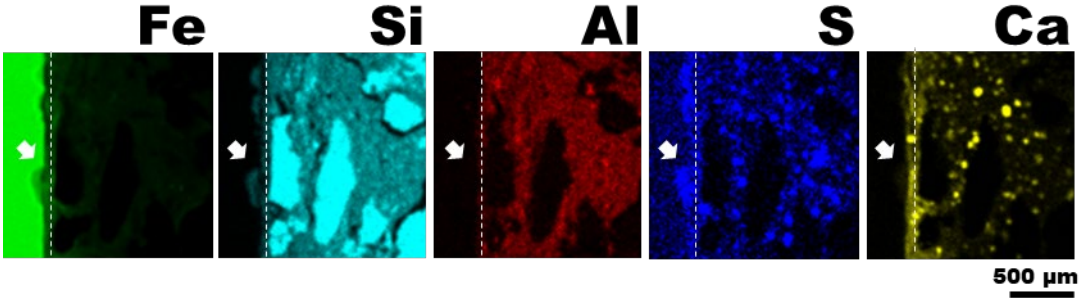


図 2.2-15　詳細元素マッピング像の湾曲部周辺の拡大図（図 2.2-14光学像の赤丸の箇所）

(f)　　走査型電子顕微鏡分析

図 2.2-16 に、SEM 観察による試験片近傍の反射電子像(BSE)と EDS による元素マッピング像(Fe, Si, Al, S, Ca)を示す。観察範囲は図 2.2-14 の光学像に赤枠で示した箇所である。反射電子像には Fe の強度プロファイルを示した。高倍率観察箇所（図 2.2-16 の赤枠で囲まれた 2 箇所、A : 湾曲部がない箇所、B : 湾曲部がある箇所）の反射電子像(BSE)と、EDS による元素マッピング像(Fe, Si, Ca)を図 2.2-17 および図 2.2-18 に示す。低倍率、高倍率とも左端は試験片、白破線は腐食生成物層とベントナイトの界面である。また、Fe 以外の元素の分布範囲を明瞭にするため、元素マッピング像を作成する際に Fe の輝度を低めに調整した。

図 2.2-16 の Fe 強度プロファイルは、腐食生成物層（厚さ 50 μm 程度）からベントナイト側に裾を引く形で減少しており、この強度変化は Ca と Fe を含む粒子（図 2.2-17 および図 2.2-18 の元素マッピング像の暗い黄色の粒子）の分布に概ね対応している。Fe 強度プロファイルをもとに見積もった腐食量は約 50 μm であった。この値は質量変化から求めた腐食量（表 2.2-16）と概ね一致している。

図 2.2-17 では、Ca と Fe を含む腐食生成物層が試験片近傍に分布しているが、帯状に Si を含有する領域が確認できる。図 2.2-18 では、試験片と Ca と Fe を含む腐食生成物層の間に試験片側に湾曲部が存在しており、湾曲部には Si と Fe が分布している。図には示していないが、他の湾曲部も同様に Si と Fe が分布している。図 2.2-17 および図 2.2-18 のいずれにおいてもベントナイト中に径数 μm 程度の Ca と Fe を含む粒子が分布している。この粒子の組成は腐食生成物層と同じであり、後述する電子回折像等によりシデライト（Ca を含有）であることを確認している。

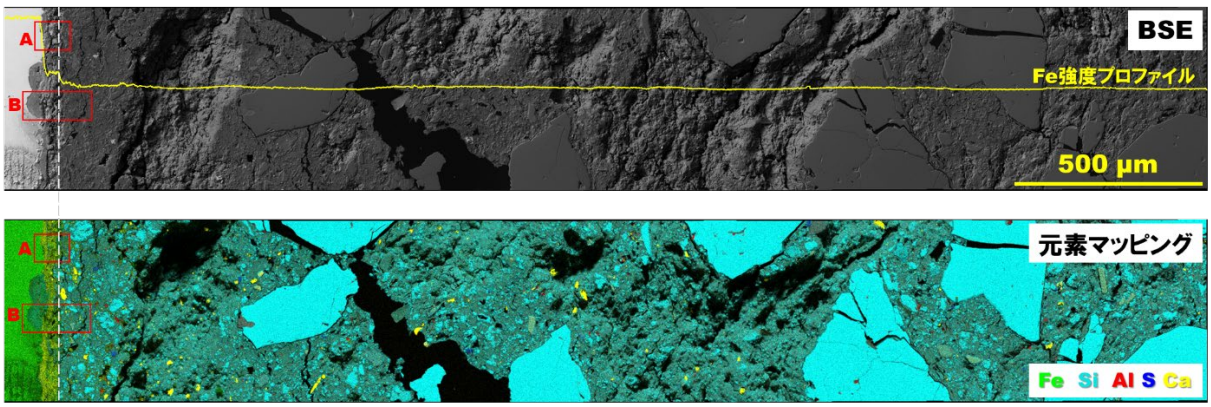


図 2.2-16　低倍率観察による試験片近傍の反射電子像および元素マッピング像（図 2.2-14の光学像の赤枠の箇所）

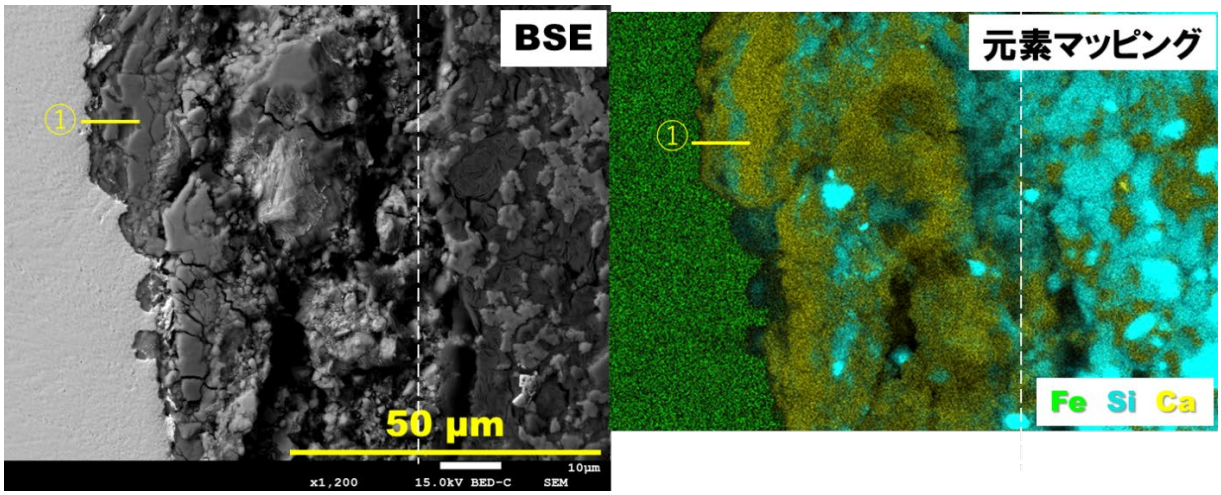


図 2.2-17　高倍率観察による試験片近傍の反射電子像および元素マッピング像（図 2.2-16の赤枠A：湾曲部がない箇所）

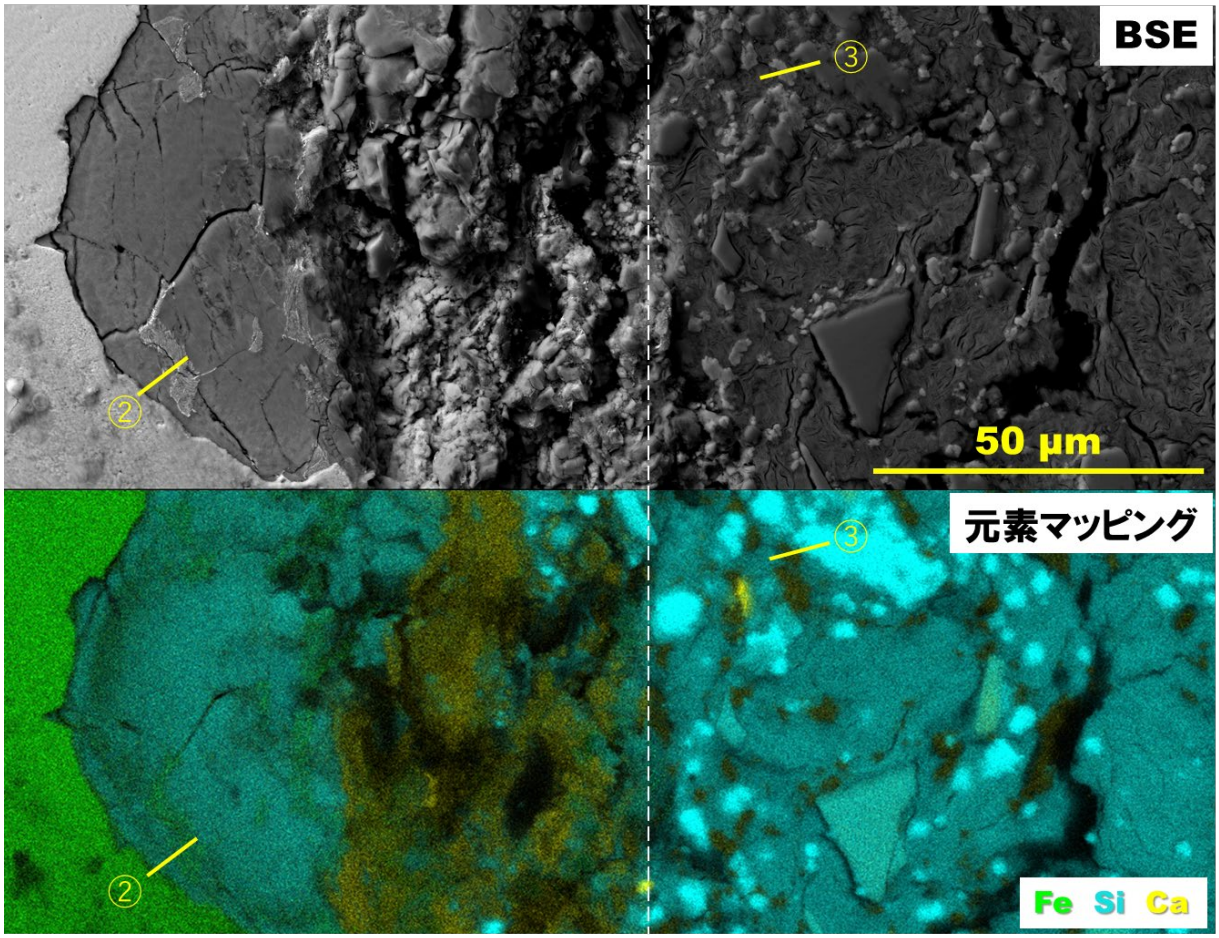


図 2.2-18　高倍率観察による試験片近傍の反射電子像および元素マッピング像（図 2.2-16の赤枠B：湾曲部がある箇所）

(g)　　透過型電子顕微鏡分析

透過型電子顕微鏡分析用の FIB 薄膜切片は、図 2.2-17 の①および図 2.2-18 の②、③から採取した。③は、Ca と Fe を含む粒子とモンモリロナイトの接触部分を含む箇所である。①、②、③の TEM 分析結果をそれぞれ図 2.2-19、図 2.2-20、図 2.2-21 に示す。いずれの図においても左側が試験片側、a が HAADF 像、b が元素マッピング像、c が EDS 分析結果と電子回折像である。c の分析位置は、HAADF 像内に示している。HAADF 像には、化学組成および電子回折像の解析により同定した物質名を記入した。

①について、腐食生成物層は主にシデライト（図 2.2-19c2：Ca を含有）から構成され、Fe ケイ酸塩（図 2.2-19c3）を帯状に挟在することが確認された。Fe ケイ酸塩のリング状の電子回折像から求めた d 値はグリーナライト(Shirozu and Bailey, 1965)の d 値に類似している。金属鉄と腐食生成物層の境界部にはマグネタイト（図 2.2-19c1）の薄層が確認された。

②について、湾曲部の物質は主に Fe ケイ酸塩（図 2.2-20c3）であり、湾曲部にはシデライトは分布していないことが確認された。Fe ケイ酸塩の電子回折像はイスコライト(iscorite：Fe_7SiO_{10})(Smuts et al., 1969；Van Aken et al., 2005)に一致した。①と同様に、金属鉄と腐食生成物層の境界部にはマグネタイト（図 2.2-20c1）の薄層が確認された。ラメラ状の組織の輝度の高い部分（図 2.2-20c1）にはセメンタイト(Fe_3C)が含まれており、試験片にもともと含まれていたパーライト構造が残存したものである。

③について、元素マッピング像（図 2.2-21b）の黄緑色で示される径数 μm の粒子はシデライト、水色の粒子はシリカ鉱物であることが確認された。その他の領域はモンモリロナイトである。電子回折像から求めた(001)の d 値(d_{001})は 10Å、15Åの 2 種類であった（図 2.2-21c2, c3）。モンモリロナイトの層間陽イオンが Fe に変化（Fe 型化）している可能性がある。図 2.2-22 にはシデライトとシリカ鉱物、シデライトとモンモリロナイトの境界部分（図 2.2-21 の赤破線枠）を示した。HAADF 像、元素マッピング像それぞれにおいて、鉱物の境界は明瞭であり、反応縁のような箇所は確認できない。

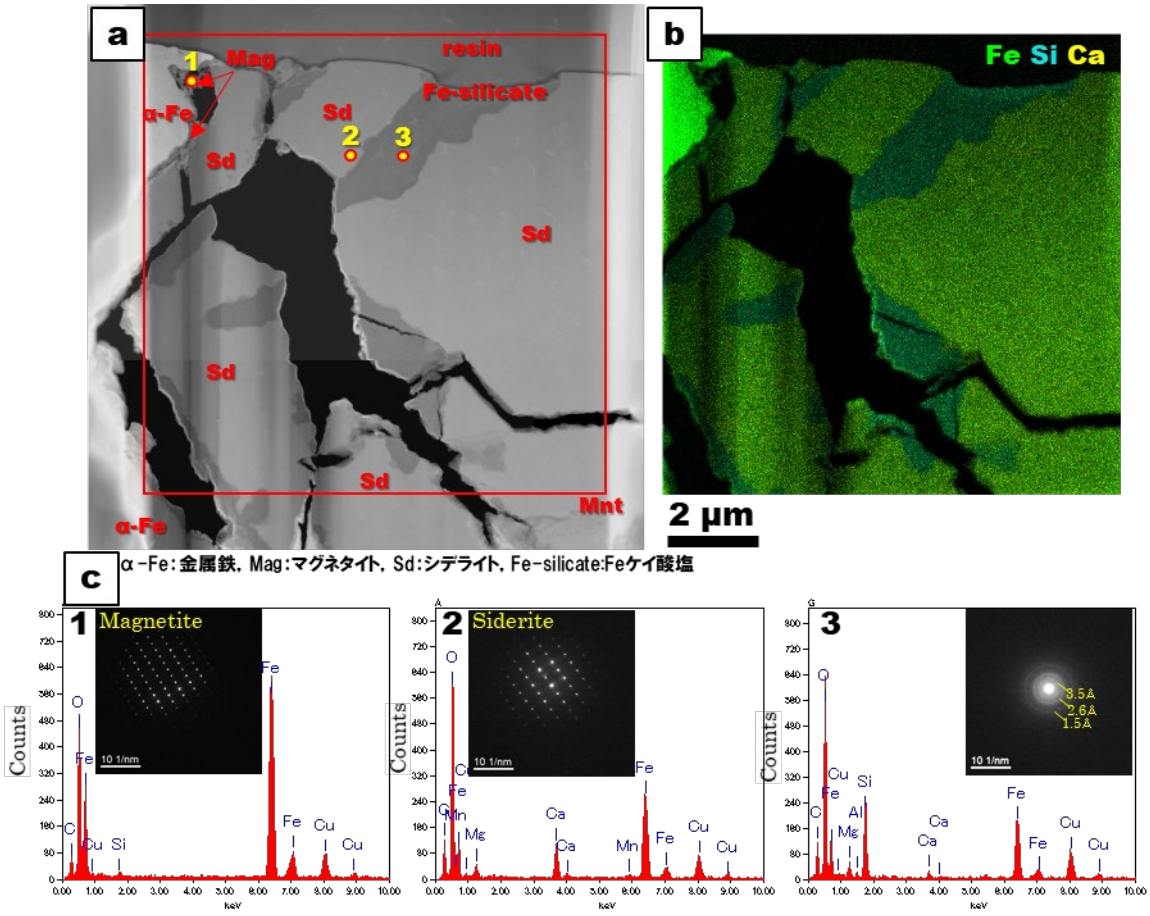


図 2.2-19　①のTEM分析結果

（a：HAADF像、b：元素マッピング像、c：EDS分析結果と電子回折像）

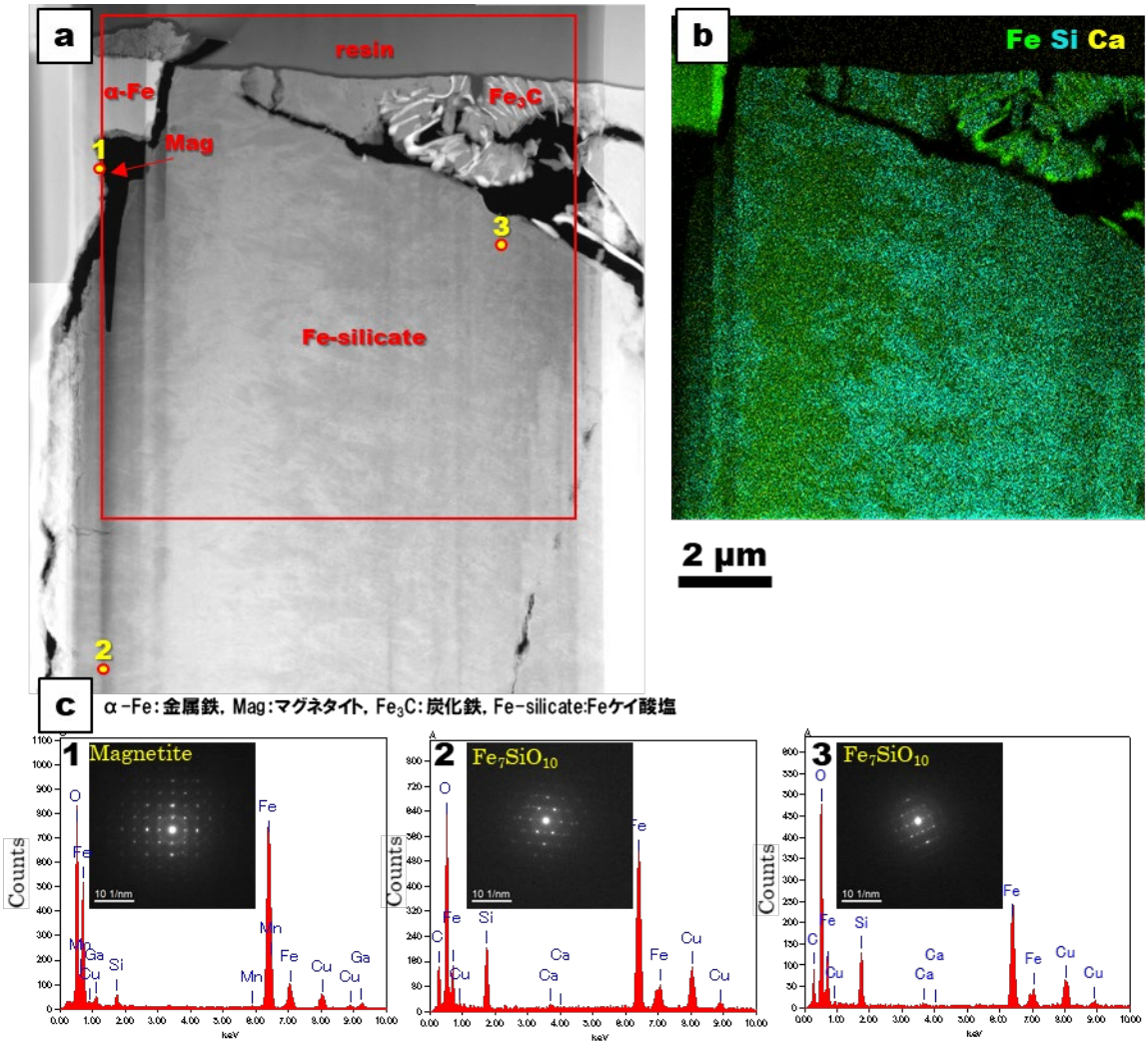


図 2.2-20　②のTEM分析結果

（a：HAADF像、b：元素マッピング像、c：EDS分析結果と電子回折像）

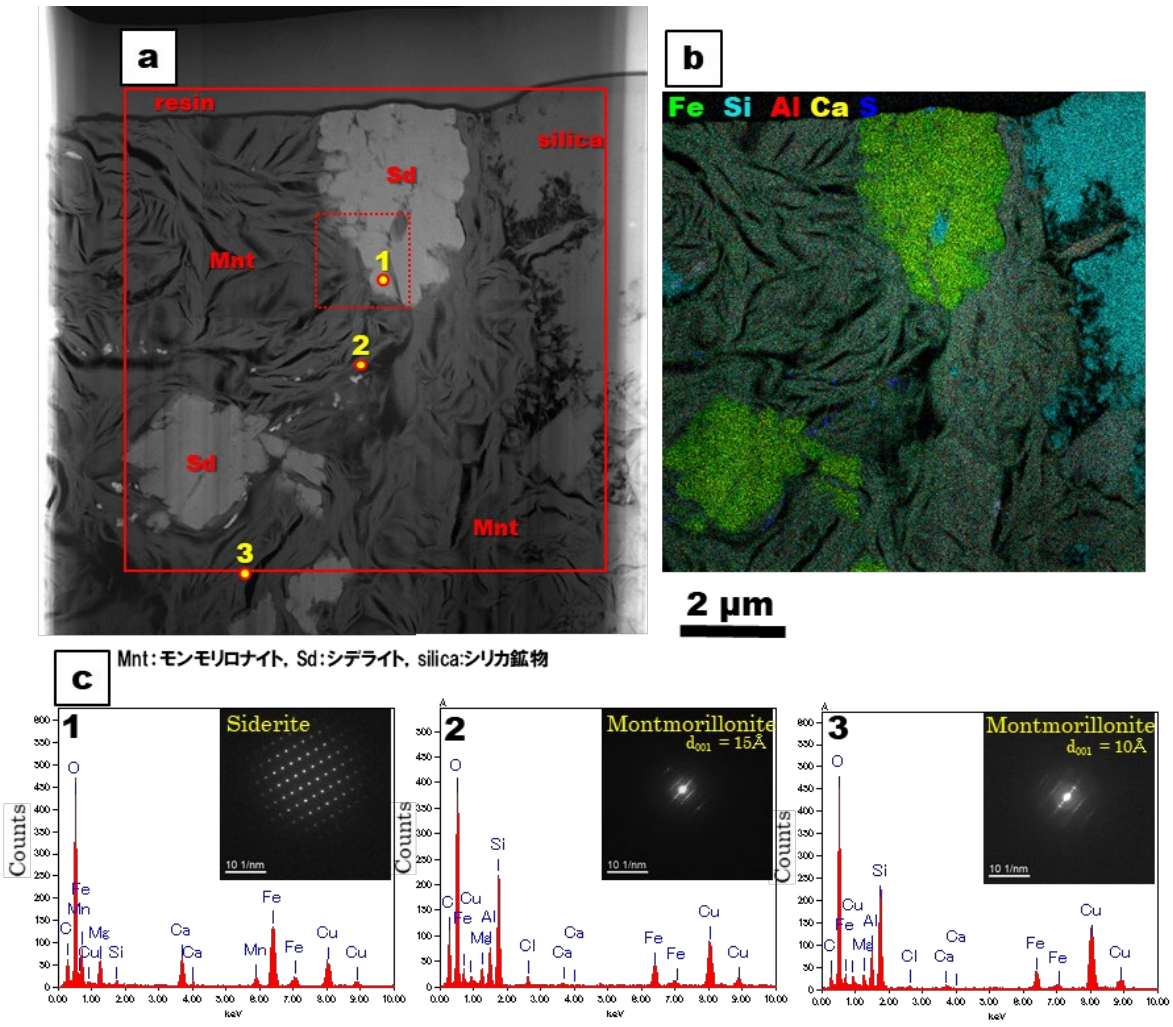


図 2.2-21　③のTEM分析結果

（a：HAADF像、b：元素マッピング像、c：EDS分析結果と電子回折像）

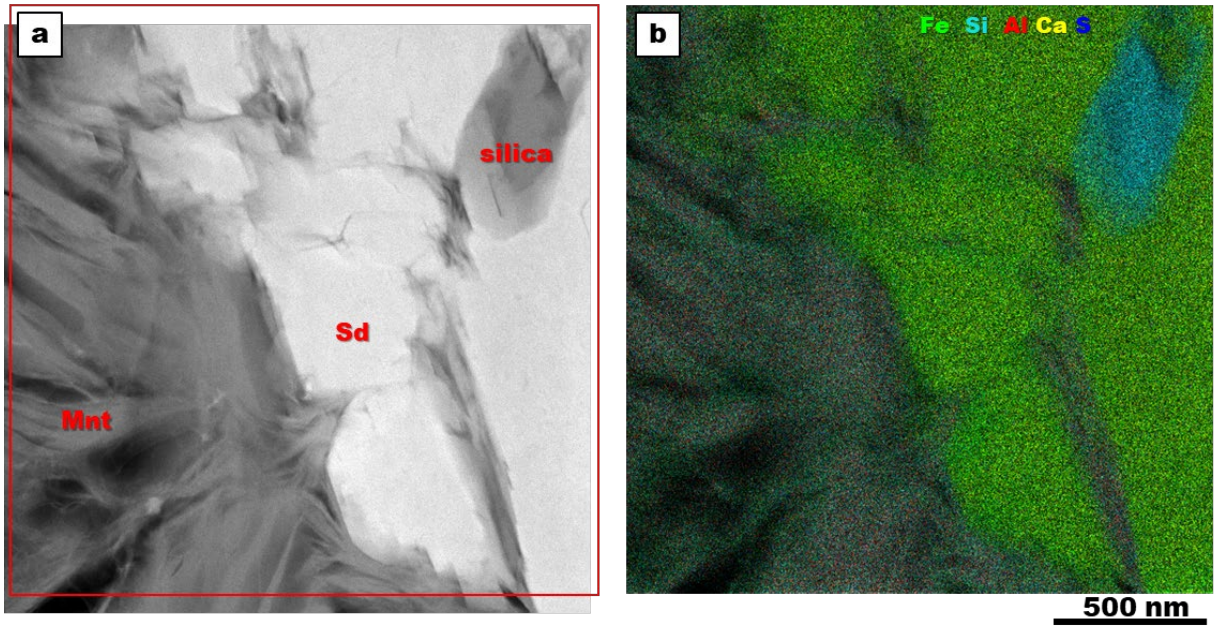


図 2.2-22　③の拡大部分（図 2.2-21の赤破線枠部）のTEM分析結果
（a：HAADF像、b：元素マッピング像）

(h)　　顕微ラマン分光分析

図 2.2-23 に顕微ラマン分光分析結果を示す。a が分析箇所、得られた b がラマンスペクトルである。1600 cm^{-1} 付近のピーク（グラファイト）は SEM 分析の際に蒸着したカーボンのスペクトルである。TEM 分析では湾曲部に電子回折像がイスコライトに一致する物質の存在を確認したが、湾曲部(①, ②)の顕微ラマン分光分析では明瞭なスペクトルを得ることはできなかった。腐食生成物層(③, ④)はシデライトに対応するスペクトルであった。また、一部(⑤)マキナワイト(FeS)に対応するスペクトルを示す物質を確認した。

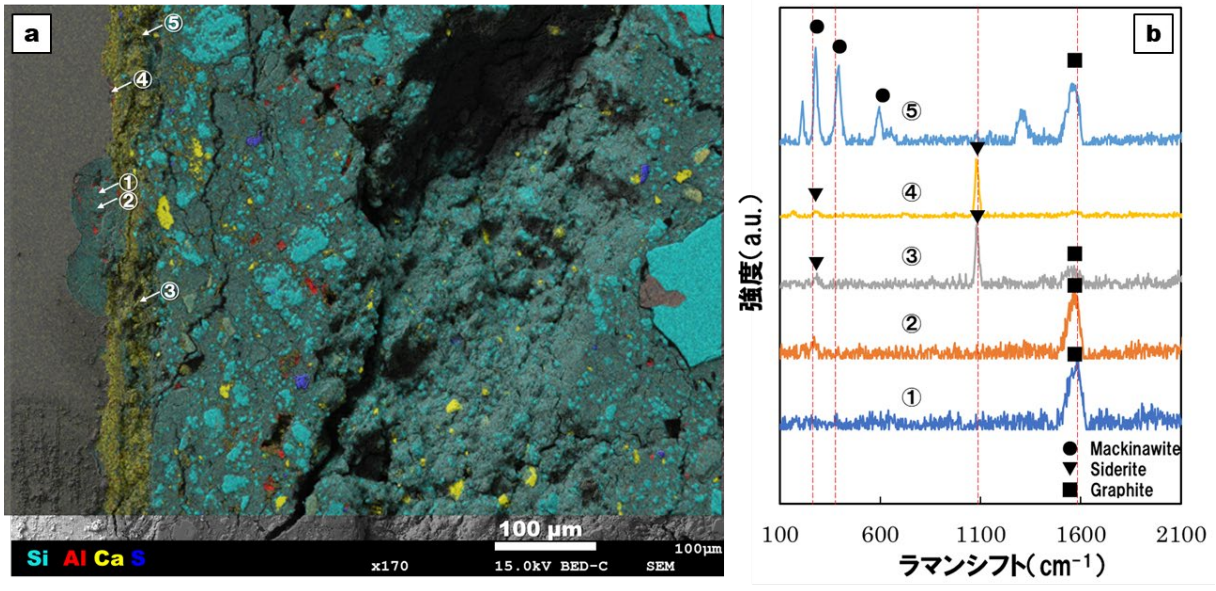


図 2.2-23　顕微ラマン分光分析結果（a：分析箇所、b：ラマンスペクトル）

(i) 考察

図 2.2-11 に示したように、試験期間 21 年の超長期試験の平均腐食量は、既存の同一試験条件（緩衝材乾燥密度：1.6 Mg/m^3、ケイ砂混合率：30 %、試験温度：80 °C、試験溶液：人工海水）の平均腐食量（鈴木ほか, 2023）に基づくべき乗則モデルの外挿により推定した腐食量（緑色の破線）と概ね一致した。一方、試験期間 10 年の谷口ほか(2008)のデータ（緩衝材乾燥密度：1.8 Mg/m^3、ケイ砂混合率：0 %、試験温度：80 °C、試験溶液：人工海水）と比較すると平均腐食量はやや大きい傾向が認められる。有効粘土密度は、超長期試験および鈴木ほか(2023)の試験では 1.37 Mg/m^3、谷口ほか(2008)の試験では 1.8 Mg/m^3 であり、この違いが腐食挙動に影響している可能性が示唆される。

腐食生成物について、X 線回折分析ではシデライトのみが検出されているが、微小部 X 線分析、走査型電子顕微鏡分析、透過型電子顕微鏡分析により、腐食生成物層内に Fe ケイ酸塩が存在することが確認された。また、腐食生成物層とメタルの界面部分にマグネタイトの薄層も確認された。Fe ケイ酸塩は、シデライトからなる腐食生成物層内に帯状に分布するものとシデライトからなる腐食生成物層とメタルの間にある湾曲部に分布するものがあり、電子回折分析により前者はグリーナライト、後者はイスコライトの可能性があることが示された。腐食によって生じた湾曲部の Fe ケイ酸塩の分布は Schlegel et al.(2014；2019)、Lotz et al.(2023)などが報告している。Schlegel et al.(2019)は、カロビアン＝オックスフォーディアン(COx)粘土層から採取・成型し、合成粘土間隙水で飽和させた粘土柱に棒状の炭素鋼試験片を挿入し、90 °C の温度条件で最長 76 か月（6.3 年）年間腐食させる試験を行い、7 か月の試験期間以降、Fe ケイ酸塩が湾曲部に分布することを報告している。顕微ラマン分光分析により鉱物種の同定が試みられているが、Fe ケイ酸塩由来のスペクトルは検出されず、同定に至っていない。メタル近傍領域におけるマグネタイト薄層の分布は Schlegel et al.(2014；2019)、Leon et al.(2014；2017)などの報告がある。Leon et al.(2014)は仏国の Glinet 遺跡から出土した 450 年前の鉄釘の断面を顕微ラマン分光、透過型電子顕微鏡などを用いて分析し、メタル近傍領域にマグネタイト薄層を検出している。Leon et al.(2014)は D_2O を腐食生成物に浸透させる実験を行い、シデライトに比べてマグネタイトが緻密であり、腐食挙動がこの薄層によって制御されている可能性を述べている。

シデライトからなる腐食生成物層とメタルの界面領域にある湾曲した腐食形態は、圧縮条件の緩衝材が炭素鋼と接触する条件で実施された室内試験（例えば、Schelegel et al., 2019）や土壌中から出土した考古学的鉄製品（例えば、Leon et al., 2014)の断面試料で観察されている。Owen et al.(2022)は、腐食生成物層に存在するセメンタイト(Fe_3C)によって引き起こされる局所的な酸性化がシデライトからなる腐食生成物層を溶解し、局所的な腐食が生じると報告している。超長期試験試料の湾曲部にもセメンタイトが存在しており（図 2.2-20a)、湾曲部の形成に関係している可能性がある。また、Lotz et al.(2024)は、試験片表面にシデライトからなる保護的な腐食生成物層を形成した後に、炭素の安定同位体(^{13}C)を添加した合成 COx 地下水に浸漬させる 2 段階の浸漬試験を行い、腐食生成物層内のシデライトの溶解に伴って生成した腐食生成物層とメタルの界面領域にある湾曲部に ^{13}C を含むシデライトが沈殿することを確認した。この観察結果に基づき、保護的な腐食生成物層が形成した後に、①腐食生成物内の酸性化に伴うシデライトの溶解→②鉄の腐食（酸化）と湾曲部の生成→③腐食生成物層を通じて溶液側から湾曲部内に供給される陰イオン（CO_3^{2-}など）と陽イオン(Fe^{2+})からなる腐食生成物の沈殿、という形成プロセスを提案した。湾曲部内の Fe ケイ酸塩の沈殿について、Lotz et al.(2023)は溶液内の炭酸塩濃度の減少などが関係していると考察している。

緩衝材の変質については、間隙中のシデライトの沈殿とモンモリロナイトの Fe 型化の可能性のみが確認された。Schlegel et al.(2019)の試験条件（90 °C、6.3 年間）においても、粘土鉱物の

他鉱物への変質は確認されておらず、Fe ケイ酸塩の沈殿は腐食生成物層内に限定されている。Schlegel et al.(2019)は腐食生成物層内における Fe ケイ酸塩の沈殿が pH を低下させることで粘土鉱物の変質を抑制していると考察している。図 2.2-24 に超長期試験試料の今年度の分析結果と文献調査結果に基づく試験片/緩衝材界面近傍の状態の変遷の現段階でのイメージを示す。セメンタイトの影響による腐食生成物層の溶解やそれに伴う湾曲した腐食形態、湾曲部での Fe ケイ酸塩の沈殿など、ここ数年の研究結果として報告された現象であり、メカニズムや発現条件、長期的な影響などの詳細については未だ不明な点が多い。試験期間が数か月から数年程度の短期試験試料の分析も実施し、腐食や緩衝材変質に関するモデルの構築に反映する必要がある。

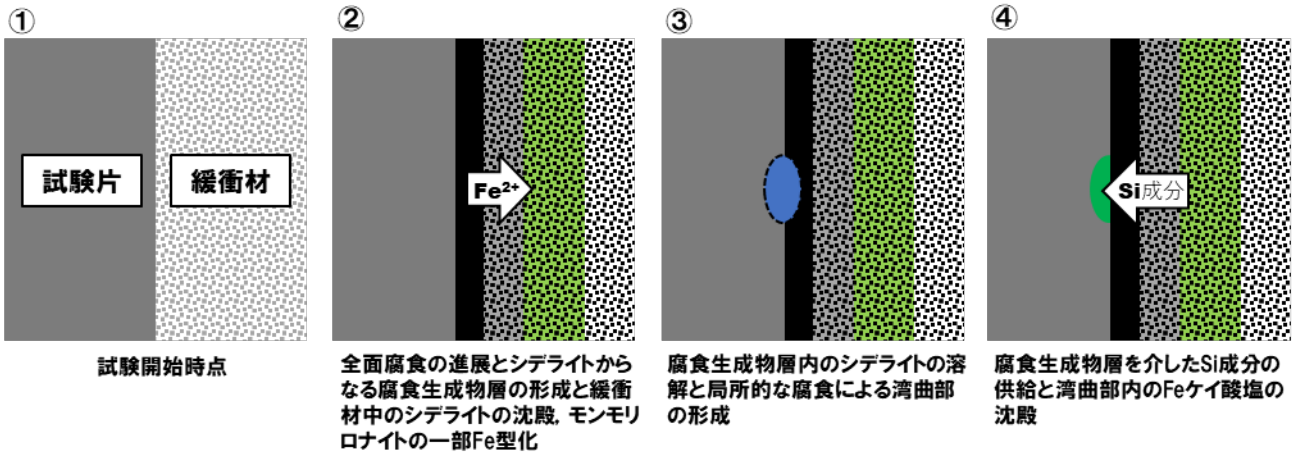


図 2.2-24　超長期試験における試験片と緩衝材の界面近傍の状態変遷のイメージ

(3)　　成果と今後の課題

「超長期試験」について、試験前後の質量変化から炭素鋼試験片の腐食量を評価するとともに、炭素鋼試験片表面の X 線回折分析により腐食生成物の種類を同定し、既存データと一致することを確認した。また、電子顕微鏡等を用いた断面試料の観察により、腐食生成物層の厚さを把握するとともに、腐食生成物層が複数種の生成物からなること、モンモリロナイトの他の鉱物への変質は認められないことなどを確認した。今後、試験期間が数か月から数年程度の短期試験試料の分析も実施し、腐食や緩衝材変質に関するモデルの構築に反映する必要がある。

2.2.3. セメントーベントナイトの相互作用

(1) 背景と目的

人工バリアとして使用が検討されている緩衝材は、隣接するセメント材料（例えば、処分坑道の吹付けコンクリートやグラウト、廃棄体パッケージに使用されるモルタルなど）が地下水と反応して生じる高 pH 環境で変質すると考えられている（NUMO-SC 付属書 6-8）。これまで、高アルカリ環境における緩衝材変質に関する研究は、粉末試料を用いた試験で多くの知見が得られているものの、実際の処分環境で想定されている圧縮試料に関して得られている知見は多くない（横山ほか, 2006）。また、処分場の閉鎖後長期間にわたるセメント材料と緩衝材の相互作用を評価するには、数値解析による検討が必須であり、その妥当性を検証するためには、試験データを基にした解析モデルの検証と改良が重要になる。

先行事業である「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」（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, 2023）では、セメント材料として普通ポルトランドセメント（OPC）および日本原子力研究機構が開発した低アルカリセメントである HFSC (Highly Fly-ash contained Silica-fume Cement；Mihara et al., 2008)を用いて、緩衝材とセメント材料の接触界面で生じる相互作用に関するデータ取得を目的として、接触試験を実施した。接触試験の試験条件について表 2.2-17 に示す。また、その試験データ等を用いて反応輸送解析モデルに関する検討を行った。

令和 5 年度は、HFSC を用いた試験体（HFSC 試験体）のうち、試験溶液としてイオン交換水を用いて 80℃で 4 年間加熱した試験体を回収し、各種の分析を行った。また反応輸送解析では、先行事業で抽出した課題に関する不確実性の影響を検討すると共に、試験温度による試験結果の違いについて、現状の解析モデルでの再現性について検討した。

表 2.2-17　先行事業で作成した接触試験体の条件一覧と回収状況

セメント種	試料部のサイズ	ベントナイト側の試験溶液	加熱温度 (℃)	加熱期間 (年)	回収年度
HFSC	φ2×1cm	イオン交換水	50	1.25	R2
			80	0.25	H31
			80	1.25	R2
	φ2×3cm	イオン交換水	50	2	R3
			50	3	R4
			80	4	**R5**
		0.64M NaCl溶液	50	1	R3
			50	3(※)	−
OPC	φ2×1cm	イオン交換水	80	0.25	H31
	φ2×3cm	イオン交換水	50	1.25	R2
			50	3(※)	−
			80	1	R3
		0.64M NaCl溶液	50	3(※)	−

※は現在も過熱継続中（加熱期間は 2023 年度時点）

(2) 実施内容

1) セメントーベントナイト接触試験

① 試験条件

先行事業で作成した試験体のうち、試験温度 80℃で 4 年間の試験に供した HFSC 接触試験体を回収し、各種分析を行った。接触試験体の構成図を図 2.2-25 に、仕様を表 2.2-18 に示す。

回収した接触試験体は、界面からセメント側およびベントナイト側 1cm までの部分を加工し、分析用の厚片試料、薄片試料および粉末分析用試料（半円柱状）を取得した。薄片試料については、乾式研磨法（大和田ほか、2013）により試料を作製した。

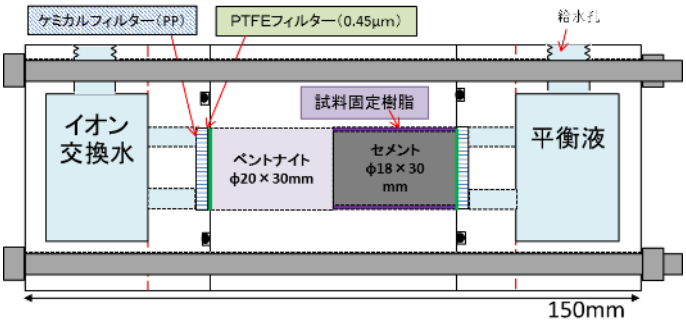


図 2.2-25 接触試験体の構成図

表 2.2-18 HFSC接触試験体の仕様

試料	仕様
セメント	HFSC424 ペースト硬化体[W/C=0.5、材齢約2.3 年]
ベントナイト	クニゲルV1[乾燥密度1.37Mg/m3]
接触液 （保水槽の液）	セメント側：HFSC 平衡液（HFSC 硬化体を粉砕し、平衡液を作製） ベントナイト側：イオン交換水

② 分析条件および分析結果

厚片試料については、電子マイクロプローブアナライザ分析（EPMA）、微小部 X 線分析、微小部 X 線回折（XRD）分析に供した。薄片試料については、走査型電子顕微鏡（SEM）および透過型電子顕微鏡（TEM）を用いて観察および分析を行った。粉末分析用試料については、マイクロフォーカスエックス線コンピュータ断層撮影（CT）を行った後、セメント側およびベントナイト側の界面近傍（界面から 0-1mm の部分）および健全部（界面から 7-10mm の部分）から粉末試料を採取して粉末 XRD 分析に供した。ベントナイト側の粉末試料については、相対湿度制御条件での XRD 分析、浸出陽イオン量分析、希塩酸への溶解試験および強熱減量測定を行った。

各分析条件および結果について、以下に記載する。

(a) マイクロフォーカスエックス線コンピュータ断層撮影（μ-XCT）による分析

試験後試料全体の密度変化を把握することを目的に、粉末分析用試料の μ-XCT による分析を行った。測定条件を表 2.2-19 に、分析結果を図 2.2-26 に示す。ベントナイト側では顕著な密度変化は確認されなかったものの、HFSC 側では界面から数 mm 程度の範囲で密度の低下が確認さ

れた。

表 2.2-19　μ-XCTの分析条件

測定試料	半円柱状試料（湿潤状態）	
測定装置	株式会社島津製作所製 inspeXio SMX-225CTS	
測定方法	マルチローテート方式	
測定条件	管電圧［kV］	200
	管電流［μA］	70
	SRD※［mm］	200
	Voxel size［mm/voxel］	0.049
	Line size［mm/line］	0.034
	走査ビュー数［-］	600
	画像サイズ［pixel×pixel］	2048×2048
使用解析ソフト	ボリュームグラフィックス株式会社製 VGSTUDIO MAX 3.3	
備考	※X線照射部分と検出部の距離（取得する断層画像の解像度に影響）	

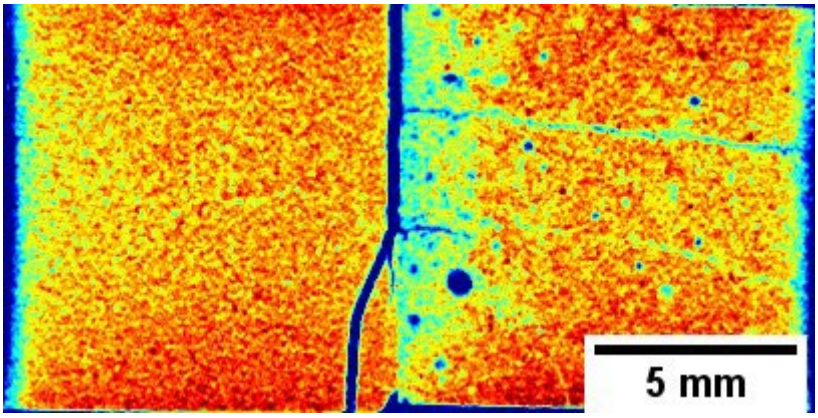


図 2.2-26　半円柱状試料のμ-XCT画像
（左側がベントナイト、右側がセメント部。寒色：低CT値、暖色：高CT値）

(b)　電子マイクロプローブアナライザ分析（EPMA）

ベントナイト側からセメント側にかけての元素分布を調査する目的で、厚片試料を対象にEPMA 分析を行った。測定条件を表 2.2-20 に示す。

測定結果については、セメント側とベントナイト側で元素含有量が著しく異なることから、セメント側の元素分布が明瞭になるように調整した元素マップを図 2.2-27 に、セメント側の元素分布が明瞭になるように調整した元素マップを図 2.2-28 に示す。ベントナイト側では試料内部における濃度の不均一性が一部の元素で確認されたものの、界面部にかけて顕著な変質は確認されなかった。一方でセメント側では、界面から数 mm の領域で、Na、K および Cl が増加し、Ca および Si が減少している傾向が確認された。セメント側の Ca / Si 比に関しては、界面近傍にかけて低下する傾向が確認された。

表 2.2-20　EPMAの分析条件

測定試料	厚片試料	
測定装置	日本電子データム株式会社製、JXA-8100	
測定条件	加速電流[A]	5.E-08
	ビーム径[μm]	25
	ピクセルサイズ[μm]	50
	測定範囲	20mm四方
	対象元素	Ca, Si, Al, Mg, Fe, Na　K, Cl, S

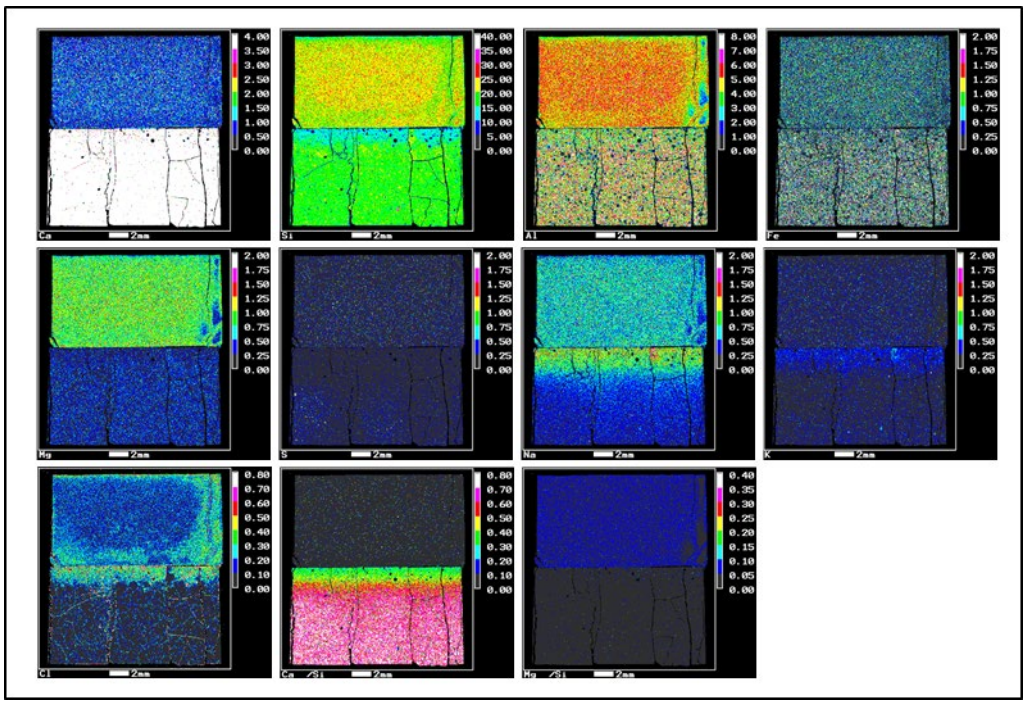


図 2.2-27　EPMAの分析結果（マップ中央より上部がベントナイト相、下部がセメント相。ベントナイト相の元素分布確認用に表示範囲を調整。元素マップは左から、上段：Ca, Si, Al, Fe, 中段：Mg, S, Na, K,　下段：Cl, Ca / Si, Mg/Si）

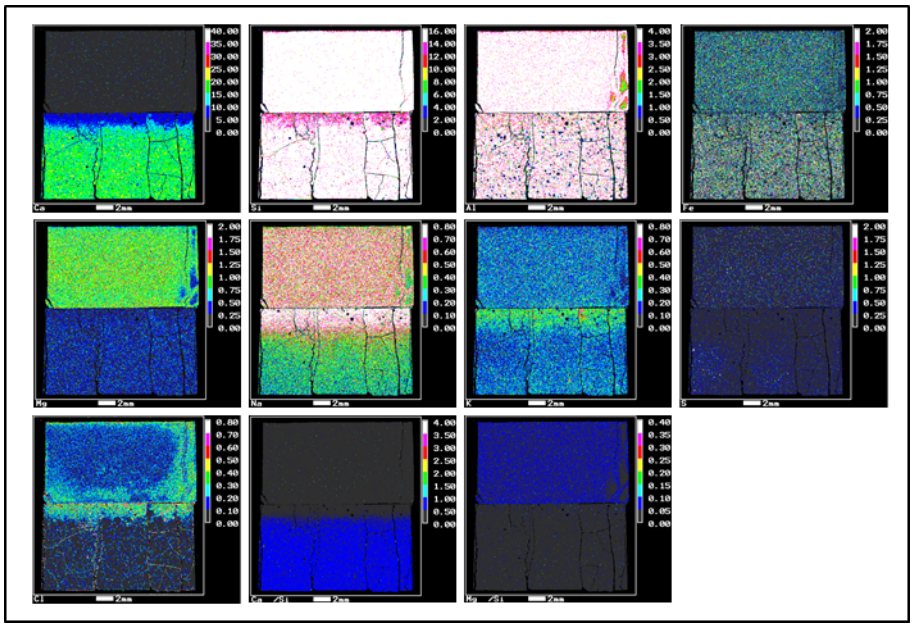


図 2.2-28　EPMAの分析結果（マップ中央より上部がベントナイト相、下部がセメント相。セメント相の元素分布確認用に表示範囲を調整。元素マップは左から、上段：Ca, Si, Al, Fe, 中段：Mg, S, Na, K, 下段：Cl, Ca / Si, Mg/Si）

(c)　微小部 X 線分析装置による分析

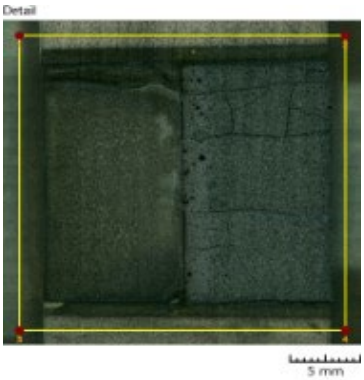
セメントーベントナイト界面におけるより詳細な元素分布の測定と間隙率に関する評価を目的として、厚片試料を対象に微小部蛍光 X 線分析（μ-XRF）および透過 X 線分析を行った。測定条件について、表 2.2-21 に示す。

広域分析の結果を図 2.2-29 に示す。ベントナイト側では界面にかけての元素分布の変化は確認されなかった。セメント側では、界面近傍で透過 X 線強度が増加（密度が低下）しており、界面近傍にかけて Ca および Si の減少、K および Na の増加が確認された。

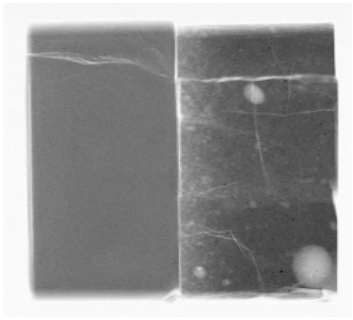
また、また、詳細分析データの内、Ca、Si および透過 X 線強度について図 2.2-30 に示す。セメント側の界面では、健全部と比較してマトリクス部の元素濃度の低下と空隙の増加が確認されており、セメント側界面において、構成材料の一部が溶出したと考えられる。

表 2.2-21　μ-XRFおよび透過X線分析の測定条件

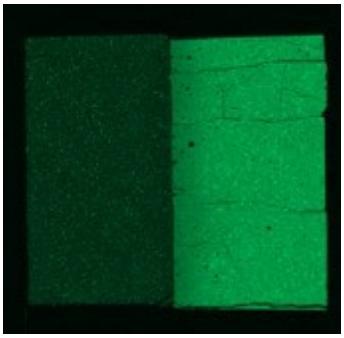
測定試料	厚片試料		
測定装置	株式会社堀場製作所製XGT-9000 Expert		
測定条件		〈広域分析〉	〈詳細分析〉
	管電圧[kV]	30	30
	管電流[μA]	1000	1000
	ピクセルタイム[ms]	40	50
	パルス処理時間	Light Elements	
	デッドタイム補正係数	50	20
	積算回数	1	2
	フィルタ	None	
	真空状態	全体真空	
	透過X線フィルタ	Al板　厚さ1mm	
	X線同館の種類	高輝度用ビーム（φ100μm）	高輝度用ビーム（φ15μm）
	ピクセルタイム[ms]分解能	86μm	14μm



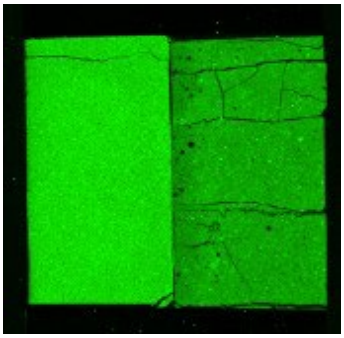
光学像（黄色枠：分析範囲）



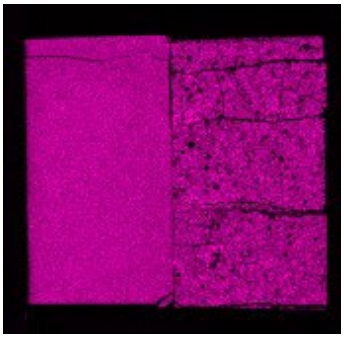
透過 X 線像



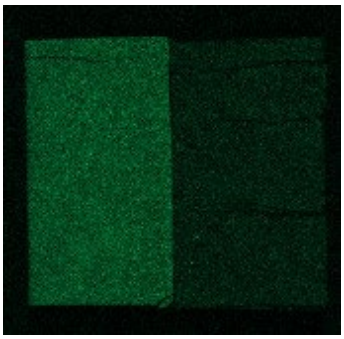
Ca



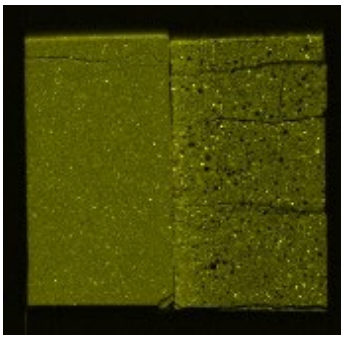
Si



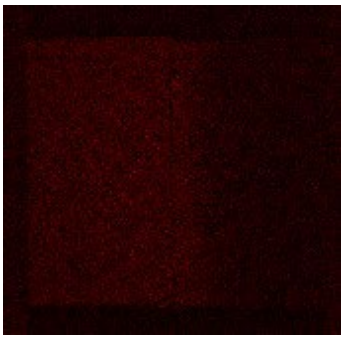
Al



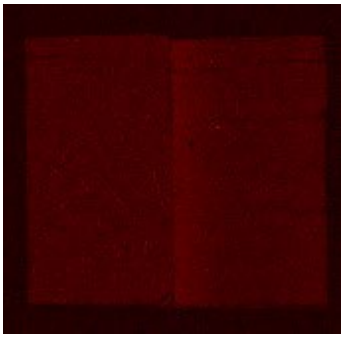
Mg



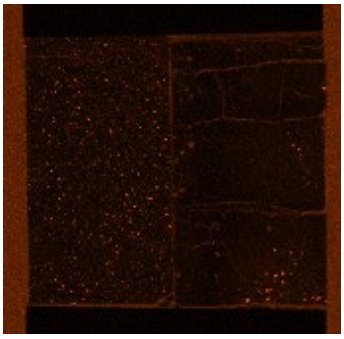
Fe



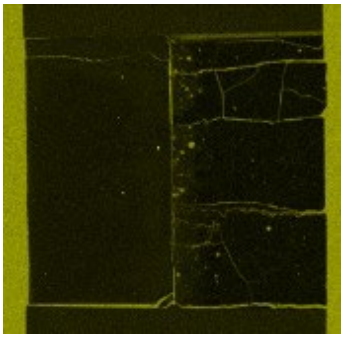
Na



K



S



Cl

図 2.2-29　厚片全体を対象とした透過X線像および元素像

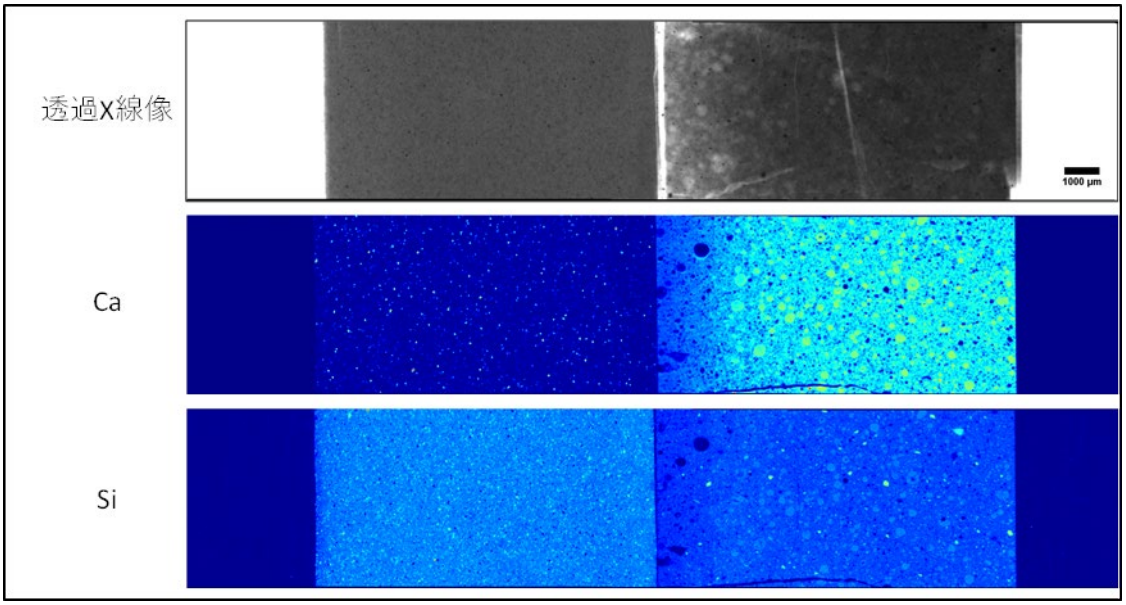


図 2.2-30　厚片試料の中央部の透過X線像および元素像（Ca, Si）

(d)　X 線回折分析（XRD）

試料中の鉱物組成を調べる目的で、各種 XRD 分析を行った。粉末 XRD 分析、μ-XRD 分析および相対湿度制御下での XRD 分析について、測定条件を表 2.2-22 - 表 2.2-24 に示す。

セメントおよびベントナイト側の健全部および界面部を対象に実施した粉末 XRD 分析の結果を図 2.2-31 および図 2.2-32 に示す。また、ベントナイト側での微小部における鉱物組成を調べるために、μ-XRD 分析を行った（図 2.2-33）。セメント側、ベントナイト側ともに、界面部と健全部では顕著な鉱物相の変化は確認されなかった。

また、ベントナイト側の健全部と界面部におけるスメクタイトの膨潤挙動を調べるために、粉末試料を用いて定方位試料を作製し、湿度制御下での XRD 分析を行った。健全部および界面部の XRD プロファイルと、各 XRD プロファイルから算出した底面間隔の相対湿度による変化を図 2.2-34 に示す。健全部と界面部ともに、相対湿度の上昇に伴い底面間隔はほぼ直線状に増加しており、RH=80%では 2 層水和程度まで膨張する結果が得られた。スメクタイトの膨張挙動は元の Na 型よりも Ca 型に類似していることから、スメクタイトの層間陽イオンについては試験前と比較して Ca イオンが増加していると考えられる。

表 2.2-22　粉末XRD分析の測定条件

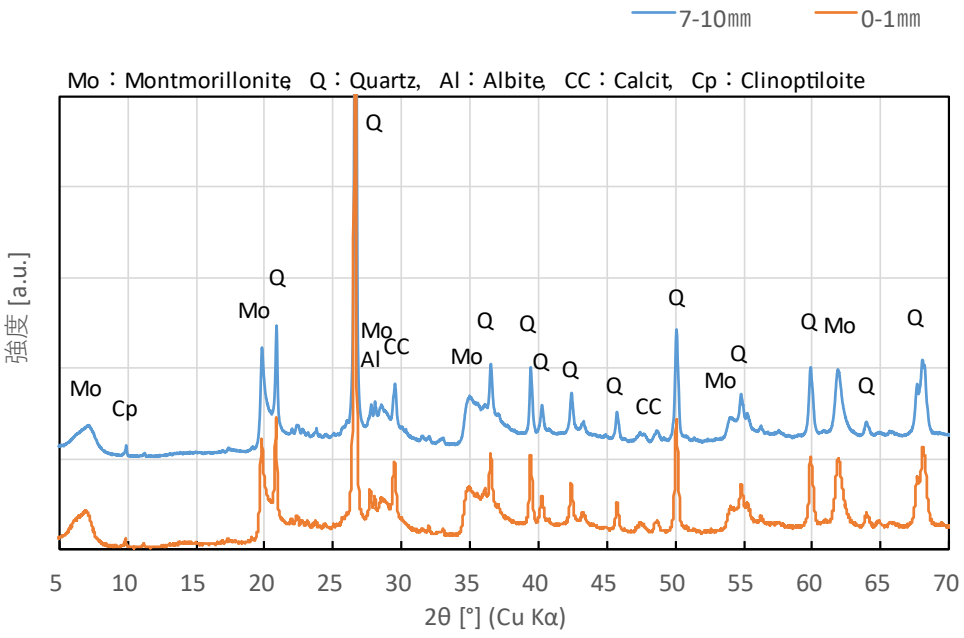
測定試料	粉末試料	
測定装置	スペクトリス株式会社（Malvern Panalytical）X'Pert PRO MPD	
測定方法、セッティング等	集中法（θ-2θ測定）	
測定条件	X線源	Cu-K_α（λ=1.54Å）
	管電圧/管電流（出力）	45kV／40mA
	可変式スリット	照射幅15mm
	ステップ	0.017°
	スキャン速度	1°/min
	スキャン範囲（2θ）	2θ = 5°～70°
	検出器	高速半導体検出器 X'Celerator
使用解析ソフト	スペクトリス株式会社（Malvern Panalytical） HighScore(Plus)	

表 2.2-23　μ-XRDの分析条件

測定試料	断面試料	
測定装置	スペクトリス株式会社（Malvern Panalytical）Empyean	
測定方法、セッティング等	集中法（θ-2θ測定）	
測定条件	X線源	Cu-K_α（λ=1.54Å）
	管電圧/管電流（出力）	45kV／40mA
	コリメータサイズ	X線モノキャピラリー，サイズ：300μm
	ステップ	0.033°
	スキャン速度	1.23° /min
	スキャン範囲（2θ）	2θ = 5° ～70°
	検出器	高速半導体検出器 dCore
使用解析ソフト	スペクトリス株式会社（Malvern Panalytical） HighScore(Plus)	

表 2.2-24　相対湿度制御下でのXRD分析の条件

測定試料	粉末試料	
測定装置	RINT2000（RIGAKU）	
測定方法、セッティング等	集中法（θ-2θ測定）	
測定条件	X線源	Cu-K_α（λ=1.54Å）
	管電圧/管電流（出力）	30kV／20mA
	スリット	発散スリット:1/2° 散乱スリット:1/2° 受光スリット:0.15mm
	ステップ	0.02°
	スキャン速度	1° /min
	スキャン範囲（2θ）	2θ = 2° ～40°
	相対湿度発生装置	精密湿度供給装置（神栄）



HFSC接触試料　80℃-4ｙ：ベントナイト相

図 2.2-31　ベントナイト側の粉末XRD分析結果

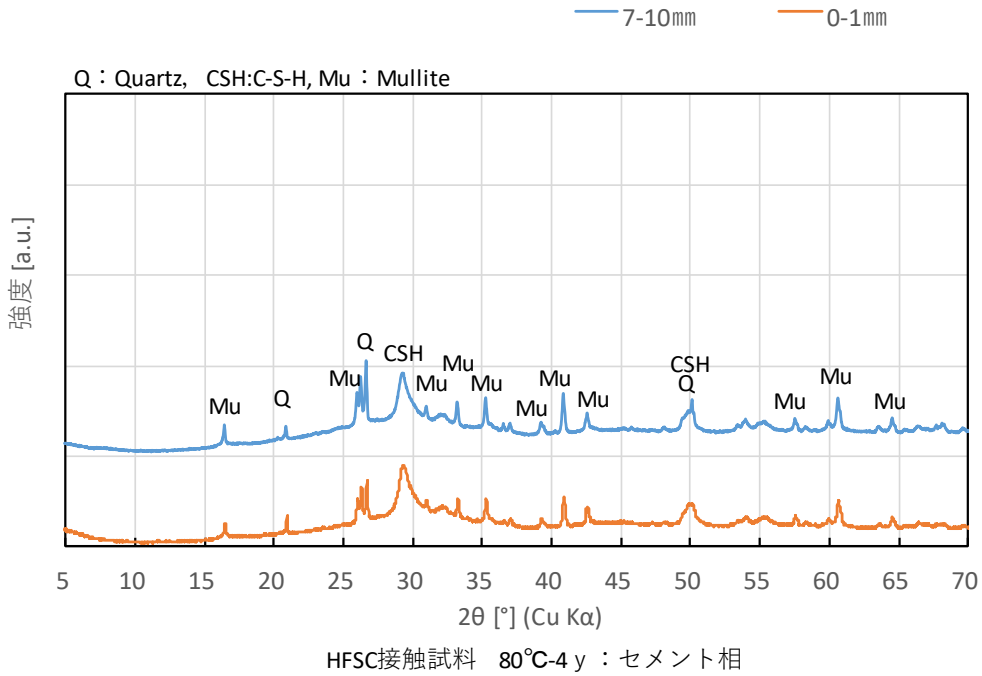


図 2.2-32 セメント側の粉末XRD分析結果

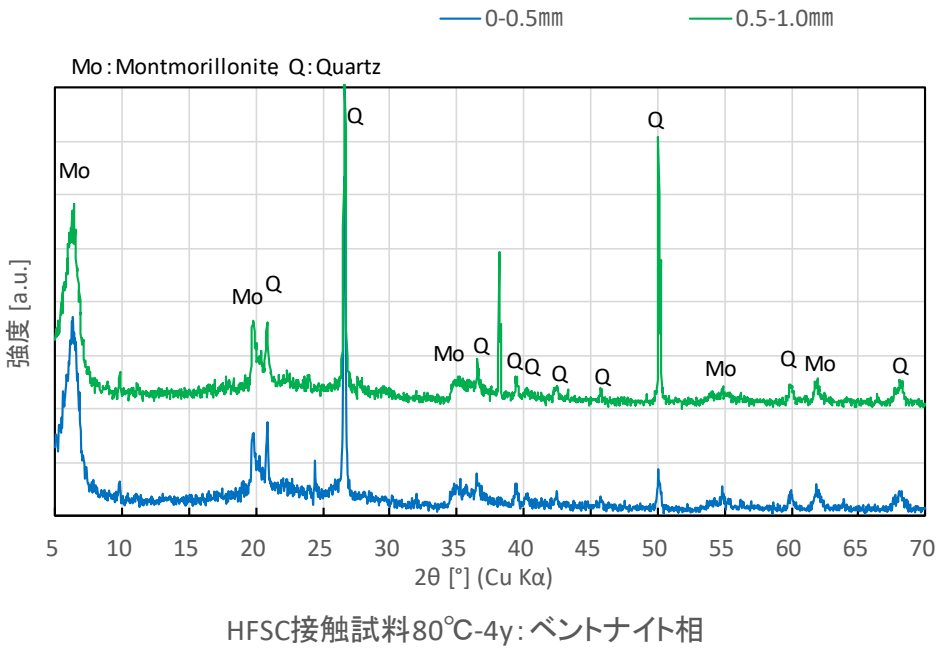


図 2.2-33 ベントナイト側のμ-XRD分析結果

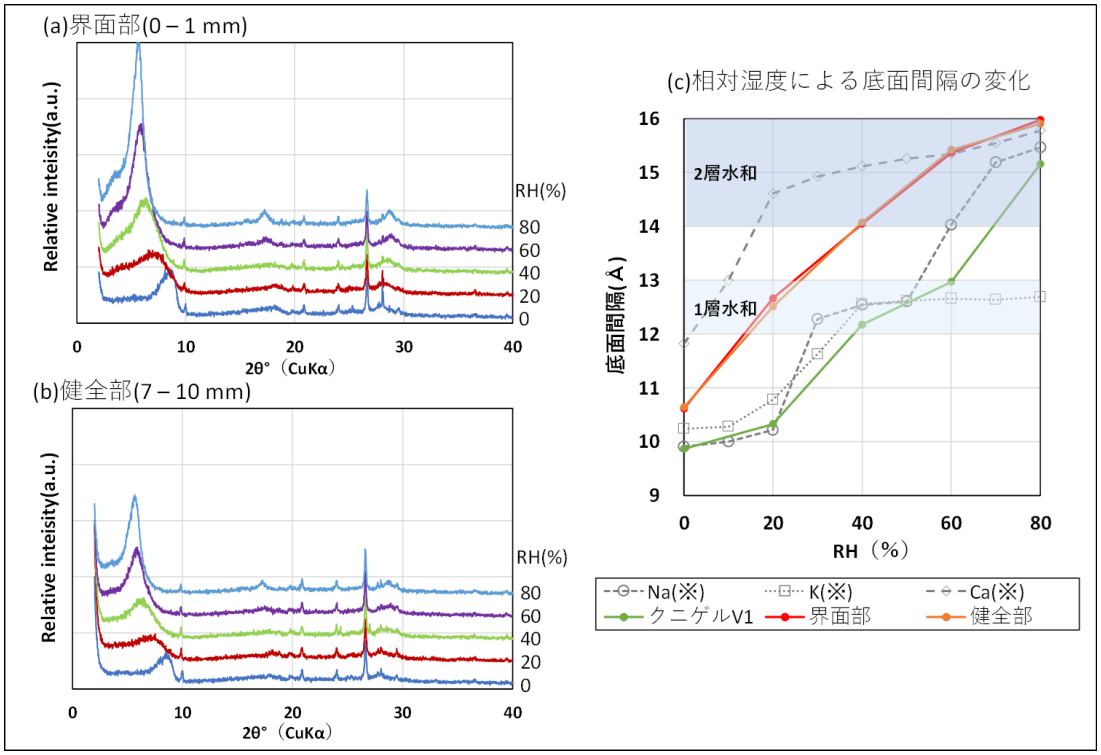


図 2.2-34　ベントナイト試料の相対湿度制御下XRD分析の結果（a:界面部のXRDプロファイル、b：健全部のXRDプロファイル、c：相対湿度による底面間隔の変化）。※はSato et al.(1992)を参照。

(e)　走査型電子顕微鏡（SEM）観察

試料中の鉱物の産状をミクロスケールで観察する目的で、薄片試料を対象に走査型電子顕微鏡による観察および元素組成分析を行った。分析面は分析実施前にブロードイオンビーム（BIB）による表面処理を行った。観察条件および BIB での加工条件について表 2.2-25 に示す。

観察結果を図 2.2-35 に示す。ベントナイト側では、健全部から界面部にかけて、構成鉱物の産状および主要元素の分布に顕著な違いは確認されなかった。一方でセメント側では、界面部にかけて Ca の減少と空隙の増加が確認された。

表 2.2-25　BIB加工およびSEM-EDS分析の条件

試料	薄片試料
<ブロードイオンビーム加工>	
装置	日立ハイテクノロジー社製　IM-3000
加速電圧	6kV
<SEM観察>	
装置(SEM)	日本電子株式会社製　JSM-7200F
装置(EDS)	Oxford Instruments株式会社製　X-Max 80mm2
加速電圧	15kV

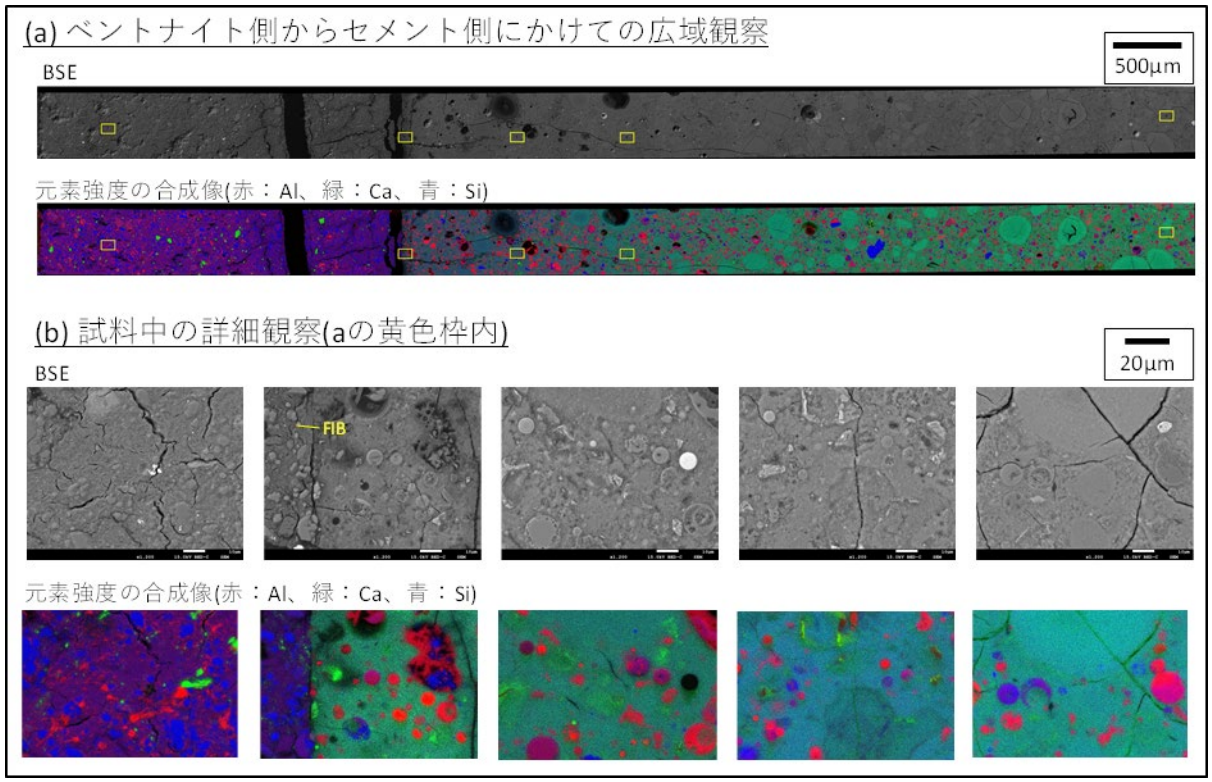


図 2.2-35　薄片試料を対象としたSEM-EDS分析結果（a:試料全体を対象とした低倍率観察、b：aの黄色枠部を対象とした詳細観察。上段は反射電子像、下段は赤（Al）、緑（Ca）、青（Si）の合成像）。

(f)　透過型電子顕微鏡分析

界面部でのベントナイト微細構造観察のために、薄片試料の透過電子顕微鏡による観察、元素分析および電子回折分析を行った。観察のために、図 2.2-35 に示した界面を含む高倍率観察視野からクライオホルダー上で収束イオンビーム（FIB）法により薄膜切片試料を作製した。FIB による加工条件と、TEM による観察および分析条件について表 2.2-26 に示す。また、分析結果について図 2.2-36 に示す。

ベントナイト中の構成鉱物として主にモンモリロナイトが確認され、その他の随伴鉱物として石英や方解石、重晶石が確認された。ベントナイト中の微細な空隙を充填するような鉱物が生成していないことから、ベントナイト側界面でモンモリロナイト等の変質による二次鉱物の生成が生じていないと考えられる。

セメント側については、一部結晶性の鉱物が確認されたものの、分析した大部分は Ca、Si および Al を含む結晶性の低い（電子回折で明瞭なスポットが得られない）物質であった。

表 2.2-26　切片試料の作製およびTEM分析の条件

試料	薄片試料
〈薄膜切片試料作製〉	
FIB装置	日立ハイテクノロジー社製 NB5000
冷却装置(ホルダー)	日立ハイテクノロジー社製 雰囲気遮断冷却ホルダー
加速電圧	40kV, 20 kV, 10kV
ステージ設定温度	約-130℃
〈FE-TEM分析条件〉	
試料支持台材質	Cuメッシュ
装置	日本電子株式会社製 JEM-2100F
	日本電子株式会社製 NEOARM(ARM200F)
加速電圧	200kV
試料ホルダー温度	-160℃(TEM全作業においてクライオホルダーを使用)
クライオホルダー	株式会社メルビル製　冷却2軸ホルダー(DT-LN2-Cooling Holder)

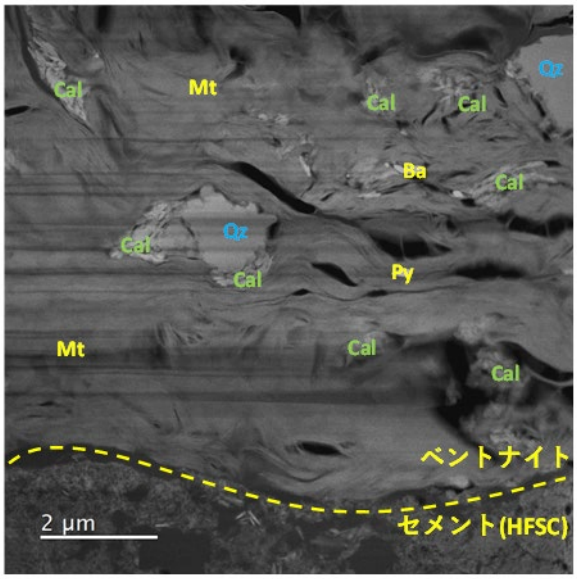


図 2.2-36　薄膜切片のTEM分析結果（画像はSTEM-BF像。詳細観察および電子回折で同定された鉱物相を記載。凡例は、Mt: モンモリロナイト、Cal:方解石、Qz：石英、Py：黄鉄鉱、Ba：重晶石）

(g)　粘土鉱物に関する化学分析

ベントナイトに含まれる粘土鉱物の変質評価を目的として、浸出陽イオン（LC）量の測定および湿式化学分析を行った。LC 量は SFSA 改良法（佐治ほか、2005）により分析を行った。また、湿式化学分析については、柴田ほか（2011）の手法により、希塩酸による湿式化学分析（Wet Chemical Analsis：WCA）及び強熱減量測定（ig-loss）を測定し、各接触試験体のベントナイト側の鉱物（シリカ鉱物及びモンモリロナイト）の溶解量と希塩酸に可溶な二次鉱物（C-S-H）の生成量を推定した。各分析には、ベントナイト側の界面部（界面から 0-1mm）および健全部（界面から 7-10mm）の粉末試料を用いた。

LC 量の測定結果を表 2.2-27 に示す。試験前のクニゲル V1 と比較して、浸出陽イオンの総量は顕著に変わらないものの、Na の割合が減少し、Ca の割合が増加している傾向が得られた。また、健全部と界面部では顕著な差は確認されなかった。

湿式化学分析の結果を表 2.2-28 に示す。希塩酸に溶解した成分の化学組成は、試験前のクニゲル V1 とほぼ同等であり、ベントナイト側鉱物のアルカリ溶液との反応による変質および二次

鉱物の生成が生じていなかったと考えられる。

表 2.2-27　LC量測定の結果

	試料位置(mm)	LC(meq/100g)				
		Na	K	Mg	Ca	total
クニゲルV1	-	61.3	0.4	0.5	10.1	72.3
HFSC	0-1	41.9	2.7	1.6	58.4	104.6
接触試料	7-10	41.3	2.6	1.3	61.7	106.9

表 2.2-28　WCAの結果

試料名		化学組成（%）									
		CaO	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MgO	SO_3	Na_2O	K_2O	不溶残分	ig-loss
クニゲルV1	–	1.6	0.1	0.1	0.1	0.1	0.3	2.1	0.2	84.8	10.6
HFSC 接触試料	0-1mm	2.6	0.1	0.2	0.1	0.1	0.3	1.4	0.4	86.1	8.7
	7-10mm	2.8	0.1	0.1	0.1	0.1	0.3	1.4	0.3	86.2	8.5

③　まとめと考察

ベントナイト側の固相分析の結果、スメクタイトの Ca 型化が生じているものの、元素分布や鉱物組成の著しい変化は確認されなかった。また、界面近傍を対象とした微細構造観察でもベントナイトの溶解や二次鉱物の沈殿は確認されず、ベントナイトの鉱物学的な変化はほとんど生じていなかったと考えられる。HFSC のセメント浸出液は普通ポルトランドセメント（OPC）の場合と比較して pH が低いことから、ケイ酸塩鉱物であるスメクタイトや玉髄の溶解速度が遅く、顕著な変質を生じなかったと考えられる。

一方でセメント（HFSC）側の固相分析では、健全部から界面部にかけて Ca、Si および Ca / Si 比の減少、K および Na の増加が確認された。界面部では健全部と比較して空隙が多く確認された一方で、鉱物学的な変質は確認できなかったことから、界面近傍で非晶質物質である C-(A-)S-H が溶解もしくは変質し、Ca および Si が溶出したと考えられる。溶出した Ca がベントナイト中に移動し、ベントナイト中のスメクタイトの層間陽イオンが Ca 型に変化したと考えられる。また K および Na の増加については、今回の分析ではこれらを含むような固相は同定されなかったものの、二次鉱物の生成もしくは非晶質物質中へ固溶されることにより、界面近傍に濃集したと考えられる。

試験温度によるセメント側の変質について検討するために、先行事業で昨年度分析した HFSC 試験体（試験温度：50℃、試験期間 3 年；以下、「HFSC-50℃-3Y」とする）の分析結果と、今年度分析した HFSC 試験体（試験温度：80℃、試験期間 4 年；以下「HFSC-80℃-4Y」とする）との比較を行った。

HFSC-50℃-3Y と HFSC-80℃−4Y の両試料において、ベントナイト側で顕著な変質は確認されなかった。セメント側で濃度変化が確認された元素について、界面に垂直な方向での濃度（強度）プロファイルを図 2.2-37 に示す。

カリウム（K）については、界面近傍で元素濃度が増加する傾向が確認され、試験温度による差異は確認されなかった。

硫黄（S）については、HFSC-50℃-3Y で界面から 2-3mm 程度の範囲で強度が低下している一方、HFSC-80℃-4Y では界面から 10mm 程度まで前者の低い強度相当であった。今回の試料では界面から 10mm 以降の試料について分析を行っていないが、界面近傍で S が減少している HFSC-50℃-3Y の結果を加味すると、HFSC-80℃-4Y ではより広い範囲で S が減少していると考えられ

る。HFSC 中の S を含む構成鉱物としてエトリンガイト（組成式）が考えられ、この鉱物の溶解に対する温度影響がこのような差を生じたと考えられる。

Ca/Si 比については、界面近傍にかけて低下する傾向が確認され、HFSC-80℃-4Y の方がより広い範囲で Ca / Si 比が減少している傾向が確認された。Ca/Si 比の変化については、HFSC 中の C-(A-)S-H 等の溶解および変質が考えられる。Ca/Si の差は比較的小さく、HFSC-50℃-3Y と HFSC-80℃-4Y との試験期間により生じた可能性も否定できないが、試験温度の違いにより変質範囲が変化した可能性も考えられる。

HFSC-50℃-3Y と HFSC-80℃-4Y との比較により、セメント側の変質範囲の違いに試験温度が寄与している可能性が示唆された。しかしながら、今回比較したデータは K および S については強度値であり、定量的な評価ができていない。また Ca/Si 比についても、比較的解像度の低い EPMA 分析の結果をもとに議論しているため、C-(A-)S-H 相以外の構成鉱物の寄与が無視できないと考えられる。今後は、より高解像度で定量的な元素分布を取得できるような詳細分析（例えば、解像度を上げた EPMA 測定など）によりデータを拡充する予定である。

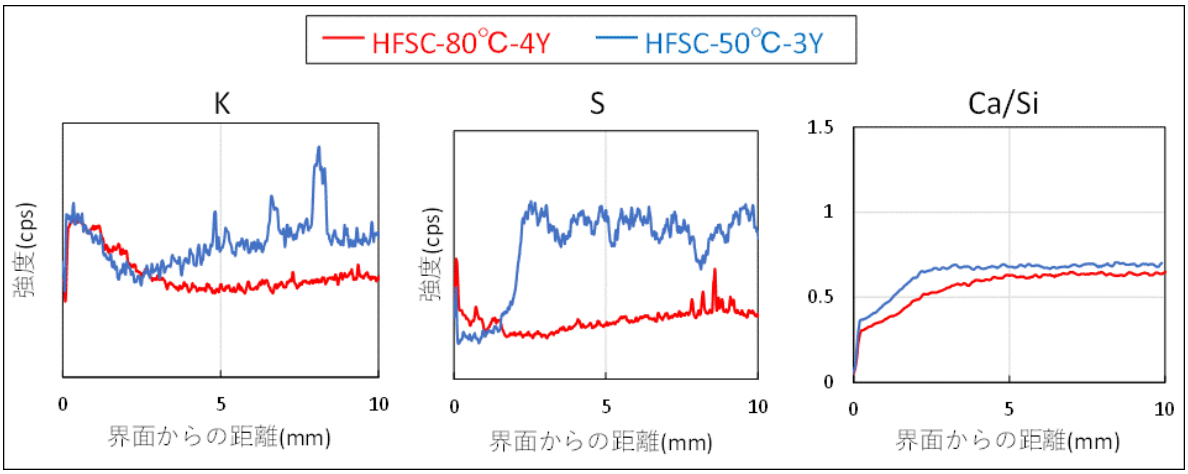


図 2.2-37　HFSC-80℃-4YおよびHFSC-50℃3Yのセメント側における元素分布の比較（カリウムおよび硫黄はμ-XRFにより取得。Ca/Si比はEPMA分析により取得したデータ。）

2)　化学反応－反応輸送連成モデルによる解析

原子力機構ではこれまで、HFSC を含めたセメントと緩衝材の相互作用を評価するための化学反応－物質輸送連成モデルの開発を行ってきた（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）。このモデルは先行事業において 1)に示したセメントーベントナイト接触試験を通じて検証・改良され、HFSC-ベントナイト接触試験の観察結果は概ね再現できるようになった。主な課題としては、1．接触界面付近でのセメント側の C-A-S-H ゲルの溶解挙動が定量的に整合していない、2. ゼオライトの沈殿が考慮されていない、という点があげられる。どちらの鉱物もモンモリロナイトとは Si や Al をめぐって競合関係にあること、界面の閉塞に関与することから重要である可能性がある。ゼオライトについては接触試験では観察されないことから強制的に沈殿させない設定としていたが、長期環境変遷評価ではゼオライトの沈殿も考慮すべきであり（電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構, 2005）、どの時間スケールからゼオライトの沈殿を想定すべきか検討する必要がある。なお、70℃でモンモリロナイトを模擬海水系地下水に浸漬させた試験（液固比 20ml/g）では半年程度の時間スケールでフィリップサイトの沈殿が見られている（市毛ら, 2009）。従って、分散系と圧縮系という違いがあるものの、年スケールの時間を対象とする接触試験においても、フィリップサイトが沈殿する可能性は否定できない。

これらのことから、今年度はまず、「①現モデルの長期挙動を把握するための予察解析」をゼオライトの沈殿も考慮して行い、セメント-ベントナイトの長期相互作用を評価するうえで重要な機構を把握した。その結果を踏まえて、「②解析パラメータの不確実性に関する検討」において、HFSC-50℃-3Y 試験を模擬した解析体系で、ゼオライトと C-(A-)S-H ゲルの溶解・沈殿に関するパラメータの不確実性が解析結果に与える影響を検討した。さらに、「③解析パラメータの検討を加味した HFSC-80℃-4Y 試験の解析」において、②で検討したパラメータの影響が、80℃ではどのように変わるかを把握した。

①　現モデルの長期挙動を把握するための予察解析

現状モデルで長期解析を行った際にどのような鉱物の挙動が緩衝材の変質に影響を及ぼすか把握するための予察解析を行った。長期解析であることを踏まえて準安定ゼオライトの沈殿を考慮した。

(a)　解析体系

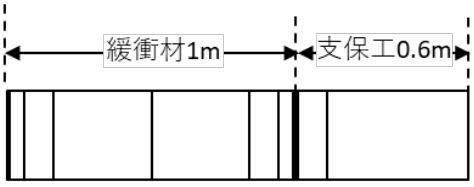


図 2.2-38　解析体系（第 2 次 TRU レポート図 4.4.2.2-5 より）

解析条件は第 2 次 TRU レポート 4.4.2「人工バリア材の変質の影響」における「準安定ゼオライトが生成するケース」を基本とし、図 2.2-38 に示した緩衝材と支保工からなる一次元の解析体系を設定した。緩衝材の組成は KunigelV1 70wt%、ケイ砂 30 wt%とした。支保工として OPC、HFSC を用いる 2 ケースを想定し、OPC の場合（ケース 1-1）は L/S=0.55、HFSC の場合（ケース 1-2）は L/S=0.5 とし、骨材/クリンカー重量比はどちらも 6.257 とした（第 2 次 TRU レポートでは骨材 70vol%に相当。表 2.2-29）。

表 2.2-29　現モデルによる長期挙動予察解析のケース設定

Case No.	緩衝材	支保工	
1-1	Kunigel V1 70wt%	OPC (L/S =0.55)	骨材/クリンカー重量比
1-2	ケイ砂 30wt%	HFSC (L/S =0.5)	6.257

鉱物の溶解・沈殿速度は先行事業で整備したモデル（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）の設定と同様とした。当該モデルで扱っていないゼオライト類とセピオライトの溶解・沈殿速度についてはアナルサイムと同様とした。支保工の外側で定濃度の FRHP と接する体系とした。温度条件は 80 ℃、解析期間は 1000 年とした。解析設定の詳細は Appendix I に示す。

(b)　結果と考察

図 2.2-39 に解析における鉱物組成の変化を示す。支保工が OPC の場合、緩衝材領域の接触界面から 1cm の部分でモンモリロナイトが溶解して 1000 年後は初期量の半分以下になっており、代わりにフィリップサイト、カルサイト、セピオライトの沈殿が見られた。支保工が HFSC の場合、モンモリロナイトの溶解はほとんど起こらなかった。このケースではゼオライトとしてヒューランダイトが沈殿した。

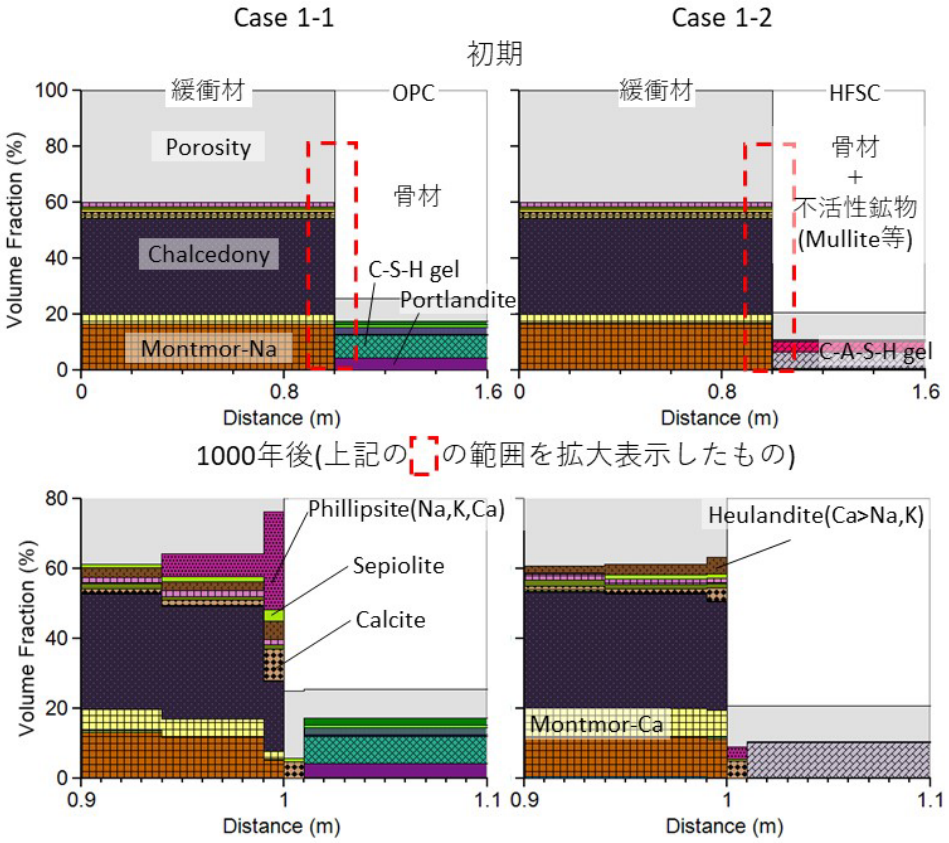


図 2.2-39　セメント-ベントナイト相互作用長期解析における鉱物組成の変化
上：初期状態　下：1000年後

両ケースの接触界面領域におけるモンモリロナイトの飽和指数(SI)の時間変化を図 2.2-40 に示す。モンモリロナイトの溶解が見られた OPC 体系では、モンモリロナイトの SI が 20 年目頃

から 1000 年目まで負になっており、溶解が進む環境になっていたのに対し、HFSC 体系ではほとんどの期間で SI は正のままであった。この SI が低下する際に増加していた鉱物はフィリップサイトとセピオライトであった。モンモリロナイトはこれらの鉱物と Si、Al、Mg をめぐって競合する関係にある。OPC 体系ではそれらが多く沈殿することによって間隙水中の Si、Al、Mg 濃度が下がり、その結果モンモリロナイトの SI が下がったと考えられる。モンモリロナイト自体の溶解速度が pH によって変化する機構も重要であると考えられるが、現モデルではそれよりさらに二次鉱物の沈殿の影響が重要であった。前述のようにフィリップサイトの沈殿は数カ月スケールの実験でも見られていることも踏まえると、接触試験の解析においてもフィリップサイトの沈殿挙動がある程度再現されなければならないと考えられる。

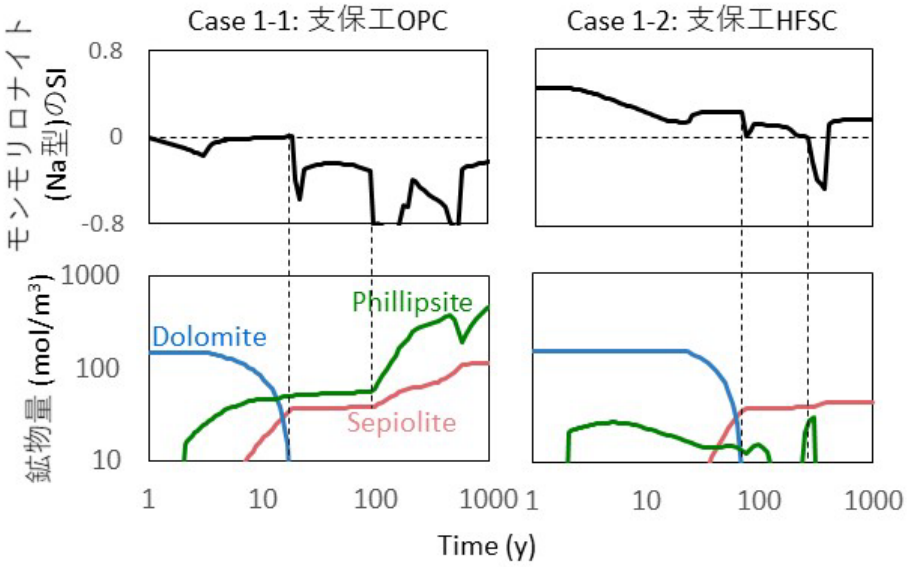


図 2.2-40　セメント-ベントナイト相互作用長期解析における緩衝材界面部のモンモリロナイトの飽和指数(SI)とその他鉱物量の時間変遷

②　解析パラメータの不確実性に関する検討

(a)　フィリップサイトの溶解沈殿パラメータの検討

①で行った予察解析によって、フィリップサイトの沈殿はモンモリロナイトの溶解に大きく影響する可能性があることが明らかとなった。しかし先行事業で行った接触試験の解析では、フィリップサイトの沈殿を許すと沈殿量が大幅に過大評価となって他のパラメータの検討が難しくなるため、暫定的に沈殿しない設定としていた（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, 2021）。現モデルでは、フィリップサイトを含めたゼオライトの溶解沈殿反応速度定数は Wilkin and Barnes (2000)によるアナルサイムの核形成・成長実験で得られた成長速度の温度依存式から求められている（日本原子力研究開発機, 2014）。この温度依存式は 125℃から 225℃という温度範囲の実験から導出された式であるため、低温側での不確実性は高いと考えられる。また、Wilkin and Barnes (2000)の論文には試験中の液相組成から求められた反応のギブス自由エネルギー変化（ΔGr）が記載されている（5.0 kJ/mol から 18 kJ/mol）が、それらの値は考慮されない式となっている。そこで、記載されたΔGr のデータから反応速度定数を再計算（ΔGr→-∞の場合に換算）したうえで、その低温側の不確実性を導出した。図 2.2-41 に再計算した反応速度定数と絶対温度の関係を示す。ここに示したように、本事業が対象とする 50℃～80℃の範囲での反応速度定数は不確実性が非常に大きかった。現設定では反応速度が過大になっ

ていると考えられるため、今回は低温側で最も反応速度が遅くなる温度依存式（図 2.2-41 中に示す）を採用した。また、本事業で使用している熱力学データベース（令和 2 年度版 JAEA 熱力学データベース）ではフィリップサイトの溶解沈殿反応の溶解度定数（Ksp）に 5 桁程度の不確実性が存在する。これを最も大きく設定することにより、沈殿速度がさらに小さくなるようにした。

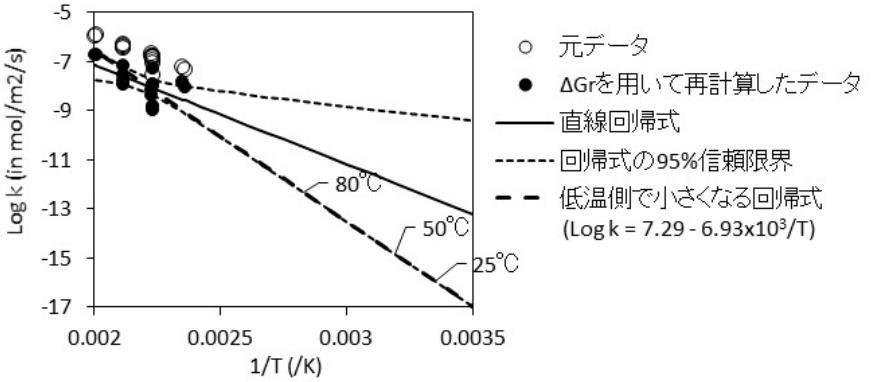


図 2.2-41　アナルサイム溶解速度と絶対温度の関係（データはWilkin and Barnes 2000より）

以上の検討を踏まえて、先行事業で構築した HFSC-50℃-3Y 試験の解析体系に、フィリップサイト、アナルサイムの沈殿設定を追加して解析を実施した。フィリップサイト、アナルサイムの溶解沈殿パラメータとして、従来使用していたものと、上記で検討した最も沈殿が遅くなるものを使用した 2 ケースの解析を行った（表 2.2-30）。

表 2.2-30　フィリップサイトの溶解・沈殿パラメータの検討のための解析ケース設定

Case No.	フィリップサイト溶解度積 (Log Ksp)	アナルサイム、フィリップサイト溶解速度定数 (Log k [in mol/m²/s])
2-1	データベースのまま	先行事業における設定 i) (50℃のとき、-10.4)
2-2	大 (+5)	小 (50℃のとき、-14.2)

i)日本原子力研究開発機, 2014

解析は図 2.2-42 のような体系で行った。保水槽の液相分析のための液交換は拡散による希釈で表現することとし、所期の交換率になるよう一部面積のみを定濃度境界とした。解析設定の詳細は Appendix I に示す。

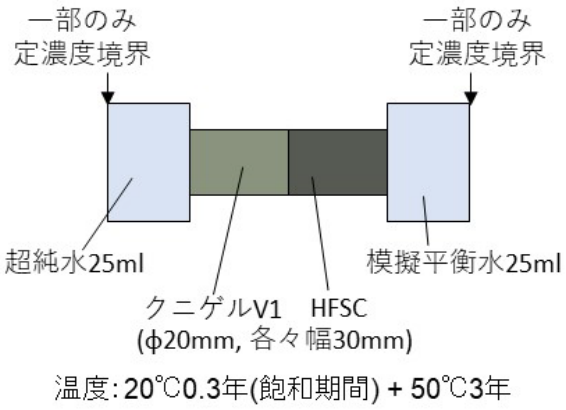


図 2.2-42　HFSC-50℃-3Y試験再現解析の体系

図 2.2-43 は解析 3 年後の接触界面付近の鉱物組成を示したものである。

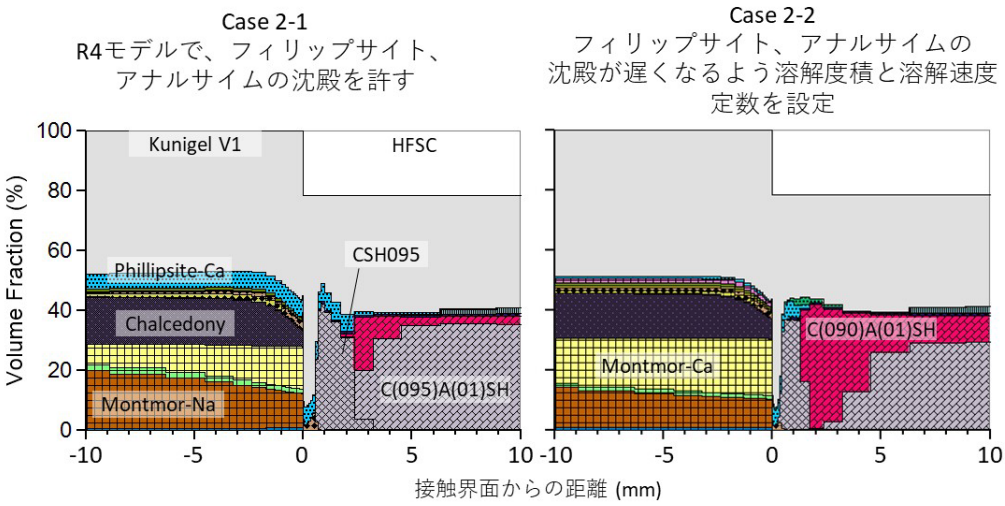


図 2.2-43　HFSC-ベントナイト接触試験（50℃）の再現解析における接触界面付近3年目の鉱物組成

沈殿を遅くしたケース 2-2 でも、セメント側で少量のフィリップサイトの沈殿が起こったが、全体的には従来の設定（ケース 2-1）に比べると大幅に沈殿量が減少した。従来パラメータのケースではわずかながら（7%程度）モンモリロナイトの溶出が起こったが、沈殿を遅くしたケースではほとんど溶出が起こらなかった。このようにフィリップサイトの溶解沈殿パラメータの不確実性が、ベントナイトの変質評価に影響を与え得ることが示されたため、今後は影響の大きさと妥当なパラメータについての検討が必要であると考えられる。

(b)　C-(A-)S-H ゲル、カルセドニの溶解沈殿パラメータの検討

先行事業からの課題である C-(A-)S-H ゲル溶解沈殿挙動の定量的再現性の低さについて、C-(A-)S-H ゲル及び C-(A-)S-H ゲルへの Si 供給源であるカルセドニについての溶解沈殿パラメータの不確実性を出典文献から評価し、不確実性の範囲内でそれらの重要性を把握した。C-(A-)S-H ゲルの溶解沈殿パラメータについては先行事業において単独では結果に与える影響が小さいこ

とが示されている（原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機, 2023）ため、ここでは組み合わせも考慮することとした。

カルセドニについては、現モデルでは溶解速度定数の pH 依存式が Plettinck et al. (1994)の非晶質シリカを対象とした実験から、温度依存式が Knauss and Wolery (1988)の石英を対象とする実験から採用されている(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機, 2023)。これらの文献に示されたデータから式に用いられたパラメータの不確実性を導出し（図 2.2-44)、アルカリ領域、50℃で最も溶解が早くなるパラメータと遅くなるパラメータを使用した（現モデルの pH12、50℃における Log k (in mol/m2/s) = -6.8 に対し、±0.7)。

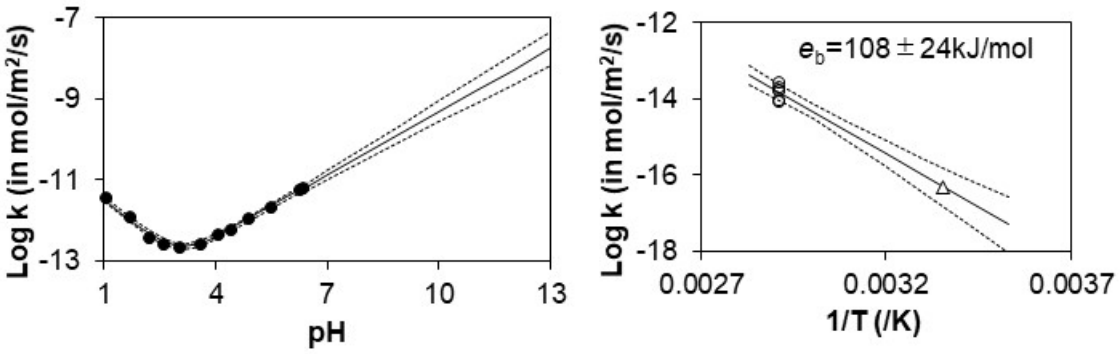


図 2.2-44　非晶質シリカ溶解速度定数のpH依存性（左；Plettinck et al. 1994より）及び石英溶解速度定数のアルカリ溶液における温度依存性（右；Knauss and Wolery 1988より）　右図上部にはアルカリ領域における溶解沈殿反応の見かけの活性化エネルギーe_bを、95%信頼限界と共に示す。点線は今回導出した関係式の95%信頼限界。

C-A-S-H ゲル溶解度積、C-A-S-H ゲル溶解速度定数、カルセドニ溶解速度定数の 3 因子について、組み合わせも考慮したケースを設定して HFSC-50℃-3Y 試験を模擬した解析を行った。解析設定の詳細は Appendix I に示す。ケース設定にあたっては全組み合わせを網羅しながらケース数を減らすために直交表を使用した（小林, 1964)。

表 2.2-31 にケース設定と結果を示す。結果には C-A-S-H ゲル溶解沈殿挙動の指標として HFSC 側の Si 減少領域幅を用いた。直交表を用いた場合、例えばケース 3-1、3-2 の結果の平均とケース 3-3、3-4 の結果の平均を比較すると、因子間の交互作用をノイズとして含んだ C-(A-)S-H ゲル溶解度積の影響を評価することになる。交互作用がノイズとして無視できないほど大きい組み合わせがある場合にはその組み合わせを含むケースだけ極端な結果を示すことが期待される。直交表を用いることにより、各因子の影響を評価すると同時に、極端な結果をもたらす組み合わせの有無を確認することができるため、ソフトウウェアのバグ確認等に使われる (高田ら, 2000) ほか、原子力分野でも利用されている（Okajima et al., 2023)。

表 2.2-31　C-(A-)S-Hゲル、カルセドニ溶解沈殿パラメータ検討のためのケース設定と結果

Case No.	C-(A-)S-H 溶解度積(Log Ksp)	C-(A-)S-H 溶解速度定数 (Log k [in mol/m²/s])	カルセドニ溶解速度定数 (Log k [in mol/m²/s])	結果(Si 減少領域幅[mm])
3-1	大 (+0.5)	大 (+1.1)	大 (+0.7)	0.75
3-2	大	小 (-1.1)	小 (-0.7)	1.15
3-3	小 (-0.5)	大	小	0.61
3-4	小	小	大	0.61

各水準の結果の平均値とその差を表 2.2-32 に示す。この表から、C-A-S-H 溶解度積は大きいほうが、C-A-S-H 溶解速度定数は小さいほうが、カルセドニ溶解速度は小さいほうが、HFSC 側の Si 減少幅が増大することが予想される。また、C-A-S-H 溶解度積の影響が最も大きく、C-A-S-H 溶解速度定数とカルセドニ溶解速度定数の影響は同程度と考えられる。

表 2.2-32　各水準の結果の平均値

因子	C-(A-)S-H 溶解度積		C-(A-)S-H 溶解速度定数		カルセドニ 溶解速度定数	
水準	大	小	大	小	大	小
結果平均(mm)	0.95	0.61	0.68	0.88	0.68	0.88
平均値の差(mm)	0.34		0.20		0.20	

ケース 3-2 は最も Si 減少幅が大きくなると予想される組み合わせと一致し、その結果は試験結果と最も近かった。図 2.2-45 に、固相中 Si 含有量の試験結果と Case 3-2 の解析結果を示す。解析結果としては先行事業のモデルと、それにフィリップサイトとアナルサイムの沈殿を組み込んだケース 2-1 の解析結果も示す。C-A-S-H ゲルの溶解速度定数が小さいほうが Si 減少領域幅が大きくなるという結果は先行事業では想定されていなかったが、これは界面付近での C-A-S-H ゲルの溶解が遅くなることによって、周辺領域で C-A-S-H ゲルのイオン積が低くなり、そのために周辺での C-A-S-H ゲル溶解が早くなったものと考えられる。この機構は拡散速度が増減すると変わる可能性があり、今後はその影響を把握する必要がある。

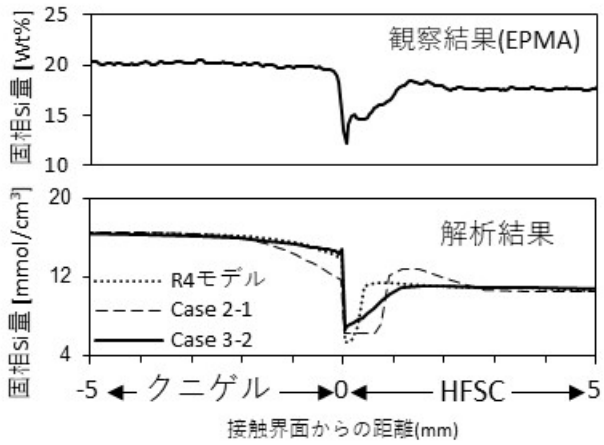


図 2.2-45　HFSC-50℃-3Y試験の固相Si量の観察結果と解析結果

③　解析パラメータの検討を加味した HFSC-80℃-4Y 試験の解析

②で検討したフィリップサイト、C-A-S-H ゲル、カルセドニの溶解・沈殿に関わるパラメータについて、HFSC-50℃-3Y 試験の結果を最もよく再現したケース 3-2 の設定で、今年度分析した HFSC-80℃-4Y 試験の接触試験を再現する解析を行った。

(a)　解析体系

HFSC-80℃-4Y 試験を模擬するため、図 2.2-42 と同様の体系で解析を行った。パラメータ等の設定は②のケース 3-2 と同様とし、温度のみを 80℃とした（ケース 4-2)。また、比較として先行事業のモデルにフィリップサイトの沈殿設定を加えたうえで温度を 80℃とした解析も行った（ケース 4-1)。

表 2.2-33　HFSC-80℃-4Y試験再現解析のためのケース設定

Case No.	フィリップサイト、アナルサイム、C-(A-)S-H、カルセドニの溶解度積、溶解速度定数の設定
4-1	先行事業の設定(ケース 2-1 と同じ)
4-2	ケース 3-2 と同じ

解析設定の詳細は Appendix I に示す。

(b)　結果と考察

固相 Si 量分布について、観察結果と解析結果を図 2.2-46 に示す。先行事業のモデルの設定（ケース 4-1）では、ベントナイト側では観察結果よりも Si 減少が過大評価、HFSC 側では界面から 1mm までの領域で過大評価、それより離れた部分では過小評価の傾向が見られた。それに対し、ケース 4-2 では両方の領域において観察結果と近い結果となった。この関係は 50℃での解析であるケース 2-1 とケース 3-2 場合と同様であり、従って今回検討したパラメータが解析結果に影響を与える機構は 80℃においても 50℃においても共通であると考えられる。

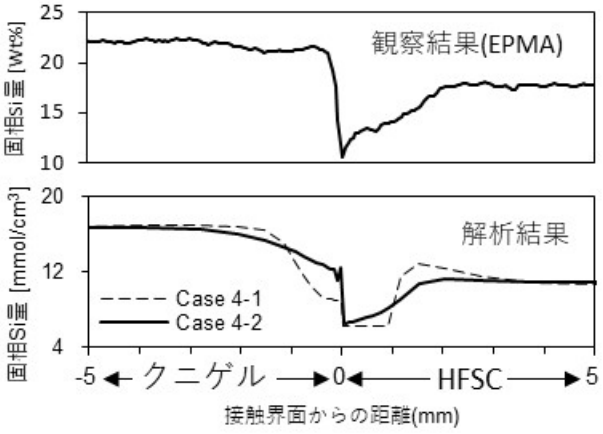


図 2.2-46　HFSC-80℃−4Yの固相Si量観察結果と解析結果

Si 以外の分布について、HFSC 側で濃度変化が観察された K、S、Ca/Si 比分布を 50℃3 年のケース（Case 3-2）と同時に図 2.2-47 に示す。HFSC 側では界面近傍で K が増加し、Ca/Si 比および S が減少すること、変質範囲が 50℃よりも 80℃の方が大きいことは観察と一致してい

る。K が増加している領域の幅、Ca/Si 比の変質領域幅が観察よりも小さい、50℃の解析で S の減少している領域の幅が観察より大きい、という点が定量的に整合していないが、それらの部分については、今後、熱力学データの温度依存性に関する検討を進めることによって解消することが期待される。

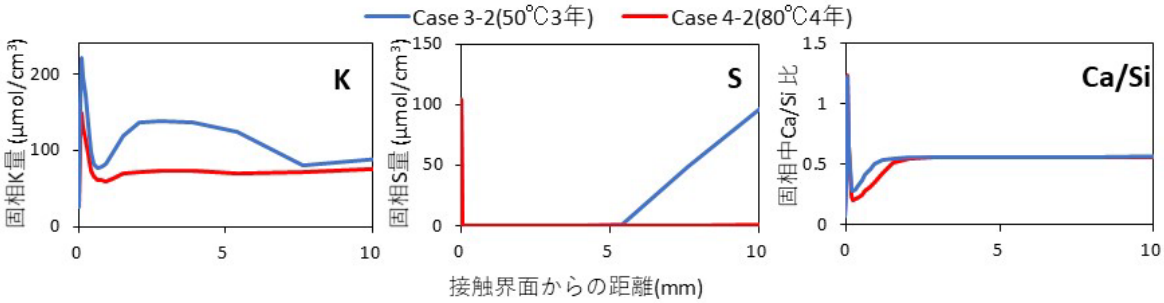


図 2.2-47　ケース3-2 （HFSC-50℃-3Y試験を模擬）、ケース4-2 （HFSC-80℃-4Yを模擬）におけるセメント側の固相K, S, Ca/Si分布

(3) 成果と今後の課題

HFSC-80℃-4Y 試料の分析に関しては、ベントナイト側の変質はイオン交換以外にほとんど確認されず、セメント側で構成元素等の溶脱が確認された。また、過年度に分析した HFSC-50℃-3Y との比較により、セメント側の変質範囲の違いに試験温度が寄与している可能性が示唆された。しかしながら、今回比較したデータは K および S については強度値であり、定量的な評価ができていない。また Ca/Si 比についても、比較的解像度の低い EPMA 分析の結果をもとに議論しているため、C-(A-)S-H 相以外の構成鉱物の寄与が無視できないと考えられる。今後は、より高解像度で定量的な元素分布を取得できるような詳細分析（例えば、解像度を上げた EPMA 測定など）によりデータを拡充する予定である。

化学反応－反応輸送連成モデルによる解析については、高温環境での長期セメント-ベントナイト相互作用においてゼオライトの沈殿挙動がモンモリロナイトの溶解に与える影響が大きいことが示された。また、短期試験におけるゼオライト沈殿挙動、C-A-S-H ゲルの溶解挙動は溶解沈殿パラメータを既知の不確実性の範囲内で増減させることで再現が可能であることが明らかとなり、セメント-ベントナイト相互作用の理解が進んだ。今後は物質輸送に関わるパラメータの影響を把握することにより、より蓋然性の高い相互作用評価と、その不確実性の把握が可能になると考えられる。

2.2.4. セメント変質

(1) 背景と目的

支保工やグラウト材などのセメント系材料から溶脱したセメント成分が岩盤やニアフィールド構成材料に及ぼす影響をより現実的に評価するためには、処分場の建設・操業期間も含め、実際の深部地下環境でセメント系材料に生じる変化を定量的に理解する必要がある。処分場閉鎖までの期間にセメント系材料の化学・水理・力学等の特性が変化する場合には、その後の長期的な変遷を考慮する際の初期条件が変化すると考えられるためである。また、2015 年 5 月に改定された「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」では、特定放射性廃棄物が最終処分施設に搬入された後においても、安全な管理が合理的に継続される範囲内で、最終処分施設の閉鎖までの間の廃棄物の搬出の可能性（回収可能性）を確保することが定められた。回収可能性の維持期間を設けることにより、坑道の開放期間は従来の概念よりも長期化すると考えられ（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, 2023a）、この期間にもセメント系材料の変質が進行する可能性がある。

これまでに、実際の深部地下環境を対象とした技術開発として、日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターの地下施設に施工されている低アルカリ性コンクリート（High Fly-ash Silica Cement：HFSC）を再現した供試体を作製し、実際の坑道内で支保工がさらされうる環境を想定して、坑道内の大気中と原位置地下水中の 2 種類の条件で定置養生した（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, 2023a）。2 年間の定置養生と、定期的な供試体の試験・分析から、以下のことが明らかとなった（原子力環境整備促進･資金管理センター・日本原子力研究開発機構, 2023a）。

- 坑道内大気中で養生（気中養生）した供試体では、約 3 mm/年の速度で表面から炭酸化（中性化）が進行した。同領域では、SO_3 濃度の減少や C-S-H の C/S 比の減少が認められた。
- 原位置地下水中で養生（水中養生）した供試体では、炭酸化（中性化）の深さは 1 mm 未満と小さかったが、同領域において CaO の濃度が減少し、C-S-H の C/S 比はほぼ 0 となっており、供試体表面で Ca と C の濃度が上昇した。表面から 1 mm 未満の領域で C-S-H などから Ca が溶脱し、供試体表面で $CaCO_3$ として沈殿したと考えられる。
- 水中養生供試体では、炭酸化（中性化）が進行していた領域（変質部）において 0.01～0.1 μm の空隙が消失し、<0.01 μm の空隙の割合が増加した。セメントの水和反応の進行により空隙構造が緻密化したと考えられる。
- 水中養生供試体では、気中養生供試体と比べて一軸圧縮強度や引張強度が高く、透水係数が 1～2 オーダー低かった。これらのことも、水和反応の進行による空隙構造の違いに起因するものと考えられる。

HFSC のような、地層処分事業への利用を主目的に開発されたコンクリート材料では、長期的な変化に関する既往の研究事例も少ないことから、実際の深部地下環境におけるデータの蓄積が重要となる。さらに、上記の試験は水分量に関して条件を制御した状態で実施したが、実際の坑道に施工された吹付けコンクリートの環境条件は時空間的な変化が大きく、それらがコンクリートの物性や化学特性などに与える影響は十分には明らかとなっていない。

本サブタスクでは、令和 2 年度に幌延深地層研究センター地下施設の 350 m 調査坑道に定置された HFSC 供試体に対して、その物性や化学特性を把握するための試験・分析を実施し、長期的な変化に関するデータを蓄積する。加えて、実際の坑道に施工された HFSC 吹付け支保工を採取し、同様の試験・分析を実施する。これまでに条件を制御した状態の試験で取得された、水分量と HFSC の特性との関係もふまえ、実際の深部地下環境でセメント系材料に生じる変化について考察する。

(2) 実施内容

1) 熱力学データの信頼性向上を目的とした室内試験

① 深部地下水による HFSC 水和物の変質試験

先進的セメント系材料の一つである HFSC は、OPC の 50wt.%以上をポゾラン材料で置換した低アルカリ性セメントである。ポゾラン材料の混合率を変えたセメントの工学的・化学的試験を基に、原子力機構は OPC(40wt%)、フライアッシュ(40wt%)、シリカフューム(20wt%)を含む低アルカリ性セメント(HFSC424)を開発した(Iriya et al., 1999; Mihara et al., 2008)。シリカフューム添加は pH 低下に対する効果が大きく、フライアッシュの使用によりフレッシュコンクリートの流動性を確保し、処分施設で使用するという工学的要求が実現された。

HFSCの地下水中での変質に関してこれまでに取得してきた実験データは表 2.2-34に示すように限られている。地下水中のHFSCの溶脱をコントロールする物理的・化学的プロセスを理解するには、さらなるデータ取得が必要となる。前述の理解とデータ取得を揃えることで、処分場環境におけるHFSCの長期的な耐久性と高アルカリプルームの形成の抑制を地球化学モデルによって予測することが可能になる。

先行事業では、多様な地下水組成での HFSC モデルの適用性検討に資するため、Cl, Mg, SO4, CO3 溶液を用いた変質試験を実施し (表 2.2-34[6]-[10])、HFSC 溶脱反応の促進への相対的な影響度合いが SO_4＜CO_3＜Cl＜Mg（人工海水中の濃度ベース）であることを把握した。本研究では、これまでに得られた知見の適用性確認を目的に、2.2.4(2)2)の試験を模擬した試験として、HFSC をイオン交換水（以下 IEW）で水和させた後、幌延地下水（GW）で変質させ、HFSC の固相と液相の特性を調べた。幌延地下水は、幌延 URL で稚内層の珪藻質堆積物中のボーリング孔 13-350-C06 から採取されたもので、0.007 M の NH4 と 0.039 M の HCO3 を比較的高濃度に含む 0.15 M 程度の NaCl の汽水である（組成の詳細については表 2.2-39 を参照）。

本研究で得られたデータは、地下水中の HFSC の溶脱をコントロールする物理的・化学的プロセスや、高アルカリ性プルームを形成する可能性を定量化・評価できるように、観察された固相と液相の変化を記述する地球化学モデルの開発に利用する。

表 2.2-34 HFSC424劣化試験の条件一覧

セメントの種類	液相	液固比 (kg/kg) *	温 度 (°C)	反応系	反応時間	参考文献
HFSC424	IEW & SW	(0.5 +) 10 → 500	室温	Single batch	1y6m	[1]
HFSC424	IEW	(0.5 +) 100 → 3000	室温	Single batch	1y6m	[2]
HFSC424	IEW	(0.5 +) 2 → 1000	室温	Single batch	10m3w	[3]
HFSC424	IEW & SW	(0.5 +) 2 → 1000	室温	Single batch	7m	[4]
HFSC424	IEW	(0.5 +) 1 → 10	室温	Single batch	4m	[5]
HFSC424	IEW	(5 → 10000)	室温	Single batch	84d	[6]
	0.64 M NaCl					
HFSC424	(IEW +)	(2 +) 5 → 10000	室温	Single batch	4m	[7]
	0.64 M NaCl	(2 +) 10 → 1000				
HFSC424	(IEW +)	(2 +) 5 → 10000	室温	Single batch	4m	[8]
	0.64 M NaCl					
	0.054 M $MgCl_2$					

(表 2.2-34の続き)

HFSC424	(IEW +) 0.029 M Na_2SO_4	(2 +) 5 → 10000	室温	Single batch	5m	[9]
HFSC424	(IEW +) 0.002 M Na_2CO_3	(2 +) 5 → 10000	室温	Single batch	5m	[10]
HFSC424	Horonobe URL groundwater	(2+) 5 → 10000	室温	Single batch	4m	[11]

*括弧内の値は初期水和（養生）期間における液固比を示す : d=日、w=週、m=月、y=年。参考文献: [1] Kamei et al., 2008. [2] Kamei et al., 2010. [3] JAEA, 2012. [4] JAEA, 2013. [5] JAEA, 2016. [6] RWMC and JAEA, 2019. [7] RWMC and JAEA, 2020. [8] RWMC and JAEA, 2021. [9] RWMC and JAEA, 2022. [10] RWMC and JAEA, 2023. [11] 今年度実施内容.

(a) HFSC スラリーと幌延 URL から採取した地下水による分解試験

OPC(一般社団法人セメント協会、研究用セメント)、SF(エルケム社製、マイクロシリカ®940 U)、FA(碧南火力発電所、フライアッシュ JIS II 種)、IEW(Mili-Q Integral 3、> 18MΩ-cm)を使用し、液固比(以下 L/S) = 2.0 kg/kg の HFSC スラリーを作製し、密閉ボトル中で 13 週間、室温(20±2)℃で一定に振盪しながら水和させた。

水和期間終了後、少量のスラリーを取り出し以下に示す液相と固相の分析によりキャラクタリゼーションを行った。固相を乾燥させ、粉末 XRD（Malvern Panalytical、X'Pert PRO MPD）で特性評価し（図 2.2.4-1）、ポゾラン反応の程度を測定した（表 2.2-35）。粉末 XRD から、HFSC の FA 成分由来の未反応鉱物であるムライトと石英、水和物として C-A-S-H ゲルとエトリンガイトの存在が確認された。ポゾラン反応の程度は SF=51%と、例年に比べて著しく低い。SF のポゾラン反応の程度が低い理由は現在のところ不明であるが、使用した水和期間が 13 週間であること、または粒度が粗いことが関係している可能性がある。HFSC424 の水和は、Anraku et al., (2019)のデータから少なくとも 26 週間が推奨される。一方、FA のポゾラン反応の程度は前年度と同じである。

表 2.2-35 HFSC424中のSFとFSのポゾラン反応率

反応時間	温度 (ºC)	液固比 (kg/kg)	ポゾラン反応率 (%) SF	FA	参考文献
4m	室温	2	81	27	[1]
13w	室温	2	86	25	[2]
13w	室温	2	87	25	[3]
13w	室温	2	71	26	[4]
13w	室温	2	51	25	[5]

w=週、m=月。参考文献: [1] RWMC and JAEA, 2020. [2] RWMC and JAEA, 2021. [3] RWMC and JAEA, 2022. [4] RWMC and JAEA, 2023. [5] 今年度実施内容. Anraku et al., (2019）よりポゾラン反応率の誤差は 10%を超えると予想される。

液相は、pH（Horiba 6367-10D 電極と Horiba D-54 pH メーター）および ICP-AES（Perkin Elmer Optima 8300）による K、Na、Ca、Si、Al、Fe、Mg、S 濃度、TOC（島津製作所 TOC-VCSH）による C 濃度、および IC（DKK-TOA ICA-2000）による Cl 濃度の測定を実施した。

残った HFSC スラリーは幌延地下水にそれぞれ L/S ＝ 5、10、30、100、300、1000、3000、および 10000 kg/kg となるように分散させ、密閉ボトル内で（20±2）oC の室温でさらに 28 日間反応させた。幌延の地下水の pH および K、Na、Ca、Si、Al、Fe、Mg、S、C、Cl の濃度は表 2.2-39 に示すとおりである。反応後、固相を再び乾燥させ、粉末 XRD による鉱物同定を実施し、液相は再び pH と K、Na、Ca、Si、Al、Fe、Mg、S、C、Cl の濃度を測定した。

(b) HFSC の水和・劣化に関する地球化学モデリングの条件設定

L/S 比 = 2 kg/kg の IEW での水和後と、L/S = 5 - 10000 kg/kg の幌延地下水での劣化分解後の HFSC424 の固相および液相での観察結果を評価するため、PHREEQC（v3.7.3）（Parkhurst and Appelo、2013）と JAEA 熱力学データベース（TDB）（v2022）（JAEA、2018 ; Walker ら、2016）を用いた地球化学計算を実施した。

OPC、SF、FA の酸化物組成（wt.%）および強熱減量（ig.loss）（表 2.2-36）、FA に含まれる結晶性の鉱物量をノルム計算に用いて、OPC、SF および FA の無水鉱物組み合わせ（表 2.2-37）を決定した。

表 2.2-36 OPC、SF、FAの酸化物組成（wt.%）および強熱減量（ig.loss）。

Component	OPC	SF	FA
SiO_2	21.57	92.80	55.9
Al_2O_3	5.30	0.69	26.3
Fe_2O_3	2.76	1.43	4.75
CaO	64.30	0.44	4.34
MgO	1.95	0.77	0.92
SO_3	1.95	<0.01	0.21
Na_2O	0.26	0.24	0.63
K_2O	0.46	1.23	0.69
CO_2	0.365 †	0	0
ig.loss	0.73	2.31 ‡	3.00 §
Total	98.915	99.92	96.74

† 強熱減量の 50%と仮定（Hewlett, 2004; Le Saoût et al., 2013; Lothenbach et al., 2008; Pelletier-Chaignat et al., 2011; Schöler et al., 2015）。‡ 水に割り当て。§ グラファイトとして炭素に割り当て。

表 2.2-37　OPC、SFおよびFAの無水鉱物組み合わせ。

OPC		SF		FA	
Component *	wt.%	Component *	wt.%	Component *	wt.%
C3S	52.23	SiO2(am)	92.80	Mullite †	15.97
C2S_beta	22.38	Corundum	0.69	Quartz †	7.45
C3A	9.37	Lime	0.44	Anhydrite †	0.35
C4AF	8.40	Na2O(s)	0.24	Graphite †	2.96
Calcite	0.83	Hematite	1.43	FA_glass_H24	70.01
Anhydrite	2.46	K2O(s)	1.23	Total	96.74
K2SO4(s)	0.77	Periclase	0.77		
Na2SO4(s)	0.27	SO3-beta	0.01		
K2O(s)	0.05	H2O	2.31		
Na2O(s)	0.14	Total	99.92		
Perilcase	1.9500				
Total	98.915				

* 鉱物名は JAEA TDB (v2022)の収録名を使用。† 定量 XRD により決定。

HFSC424 の水和は、（表 2.2-38）に示した水和前の HFSC424 を構成する無水鉱物 1kg を、t=20℃で 2kg の純水と混合することで計算した。

表 2.2-38　1kgのHFSC424に相当する無水鉱物組み合わせ

Component (A-Z) *	Composition	moles
Anhydrite	$CaSO_4$	8.2633×10^{-2}
C2S_beta	Ca_2SiO_4	0.5198
C3A	$Ca_3Al_2O_6$	0.1388
C3S	Ca_3SiO_5	0.9162
C4AF	$Ca_4Al_2Fe_2O_{10}$	6.9135×10^{-2}
Calcite	$CaCO_3$	3.3175×10^{-2}
Corundum †	Al_2O_3	1.2535×10^{-2}
FA_glass_H24	‡	7.5833×10^{-2}
FA_glass_H24_inert †	‡	0.2275
Graphite †	C	0.9849
Hematite †	Fe_2O_3	2.2052×10^{-2}
K2O(s)	K_2O	2.8069×10^{-2}
K2SO4(s)	K_2SO_4	1.7580×10^{-2}
Lime	CaO	1.5693×10^{-2}
Mullite †	$Al_6Si_2O_{13}$	0.1499
Na2O(s)	Na_2O	1.6973×10^{-2}
Na2SO4(s)	Na_2SO_4	7.5510×10^{-3}
Periclase	MgO	0.2317
Quartz †	SiO_2	0.4962
SiO2(am)	SiO_2	1.5754

(表 2.2-38の続き)

SiO2(am)_inert †	SiO_2	1.5137
SO3_beta	SO_3	2.4980×10^{-4}

* 鉱物名は JAEA TDB (v2022)の収録名を使用。† 不活性と仮定。‡ FA_glass_H24 の組成は $(K_2O)_{0.0765}(Na_2O)_{0.1612}(CaO)_{1.3108}(MgO)_{0.5568}(Al_2O_3)_{1.3872}(Fe_2O_3)_{0.1830}(SiO_2)_{11.9195}$ に設定。

コランダム、グラファイト、ヘマタイト、ムライト、石英、およびポゾラン反応率（表 2.2-35）で測定された未反応成分の SiO_2(am)と FA ガラスは不活性であると仮定した。その他の成分はすべて液相と平衡に達するようにした。C-A-S-H ゲルの可変組成と溶解度挙動は、モル Ca/(Al＋S)比(C/(A+S))=0.75、0.80、0.85、0.90、0.95、1.00、および 1.05、ならびにモル Al/Si 比(A/S)=0 (Walker et al., 2016b)、0.05、0.10、および 0.15 (RWMC and JAEA, 2021)の一連の離散固相(DSP)として記述した。C-A-S-H ゲルによるアルカリ元素 K と Na の取り込みは、(Hong and Glasser, 1999)に記載されている分配係数 Kd (mL/g)を用いてモデル化した。飽和状態になった場合に沈殿させた水和鉱物は、ettringite, monosulfate_Al ($Ca_4Al_2(OH)_{12}(SO_4)(H_2O)_8$), hemicarbonate_Al ($Ca_4Al_2(OH)_{13}(CO_3)_{0.5}(H_2O)_{5.5}$), monocarbonate_Al ($Ca_4Al_2(OH)_{12}(CO_3)(H_2O)_5$), aluminum hydroxide ($Al(OH)_3$ as Al(OH)3(mic)) ferrihydrite ($Fe(OH)_3$ as Fe(OH)3(mic)), gypsum, brucite ($Mg(OH)_2$)である。

次に、実験条件とした L/S = 5 kg/kg から L/S = 10000 kg/kg での連続的な HFSC424 の分解は、水和した HFSC424 に、幌延地下水（表 2.2-39）を加えていくことで評価した。未測定だった mM レベルの Br、I、Li、N は Mochizuki et al., (2020)で報告された濃度を使用し、μM レベルの F、Mn、P、Sr は計算に含めなかった。飽和した場合に沈殿を許容した二次鉱物は、monosulfate_Al, hemicarbonate_Al, monocarbonate_Al, Friedel's salt, Kuzel's salt, Al(OH)3(am), gypsum, brucite, vaterite, aragonite である。Cl を含む鉱物は沈殿させなかった。

表 2.2-39　幌延地下水組成の測定値および解析値。

Component *,†	(Mochizuki et al., 2020)	Present study	
		Measured ‡	Modeled ‡
pH	7.1	8.0	8.8 §
Eh (V)	–0.21	-	–0.37 §
Al	$< 3.7 \times 10^{-4}$ as Al^{3+}	< 0.004	0.004
Br	0.4	-	0.4
C(-4), CH_4	9.0	-	9.0
C(4), HCO_3^-	39.3	-	39.3
C total	48.3	33.2	48.3
Ca	2.0	0.8	0.8
Cl	124.1	123.5	124.0
F	5.264×10^{-3}	-	-
Fe	1.379×10^{-2}	$< 2.0 \times 10^{-3}$	1.379×10^{-2}
H(0), H_2(aq)	50.7	-	50.7
I	9.456×10^{-2}	-	-
K	1.7	3.13	3.13
Li	1.3	-	1.3
Mg	2.4	2.4	2.4
Mn	3.640×10^{-4}	-	-
Na	152.4	151.6	152.0
N(-3), NH_4^+	6.1	-	6.1
N(5), NO_3^-	1.613×10^{-3}	-	-
P	5.265×10^{-3}	-	-
S(-2), HS^-	6.863×10^{-4}	-	-
S(6), SO_4^{2-}	1.041×10^{-3}	-	-
S total	1.727×10^{-3}	$< 1 \times 10^{-2}$	1.727×10^{-3}
Si	0.7	0.7	0.7
Sr	1.032×10^{-2}	-	-

* すべての元素濃度を mmol/kgw で示す。† 酸化還元に敏感な元素 C、H、N、S の価数を、対応する溶存種とともに括弧内に示す。‡ -のついたセルは測定もしくは使用しなかったもの。§ 示された組成から計算された通り。

(c)　地球化学計算との比較結果

HFSC424 を IEW で水和し、幌延地下水で劣化させた試料の粉末 XRD パターンを図 2.2.4-1 に示す。HFSC424 の FA 成分に由来する無水鉱物ムライトと石英に割り当てられたピークは、すべての XRD パターンではっきりと確認でき、L/S 比が増加しても大きく変化しなかった。これは、ムライトと石英が地球化学モデルにおいて不活性であるという仮定を裏付けるものである。水和した HFSC424 鉱物群はエトリンガイトと C-A-S-H ゲルのみからなり、HFSC424 の水和で観察されたものと一致した（Anraku et al., 2019）。 エトリンガイトに帰属するピークは、L/S >

30 kg/kg で消失した。C-A-S-H ゲルに帰属されるピークは、L/S > 100 kg/kg で消失したように見えるが、C-A-S-H ゲルと方解石のピーク極大が 29.5° 2θ CuKα で重なるため、確認は困難であった。二次鉱物としての方解石の析出は、L/S 比が 5 kg/kg を超えると急速に現れ、L/S 比の増加とともに強度が増加した。これらの変化は、幌延地下水の炭酸による HFSC424 の劣化を示すものである。

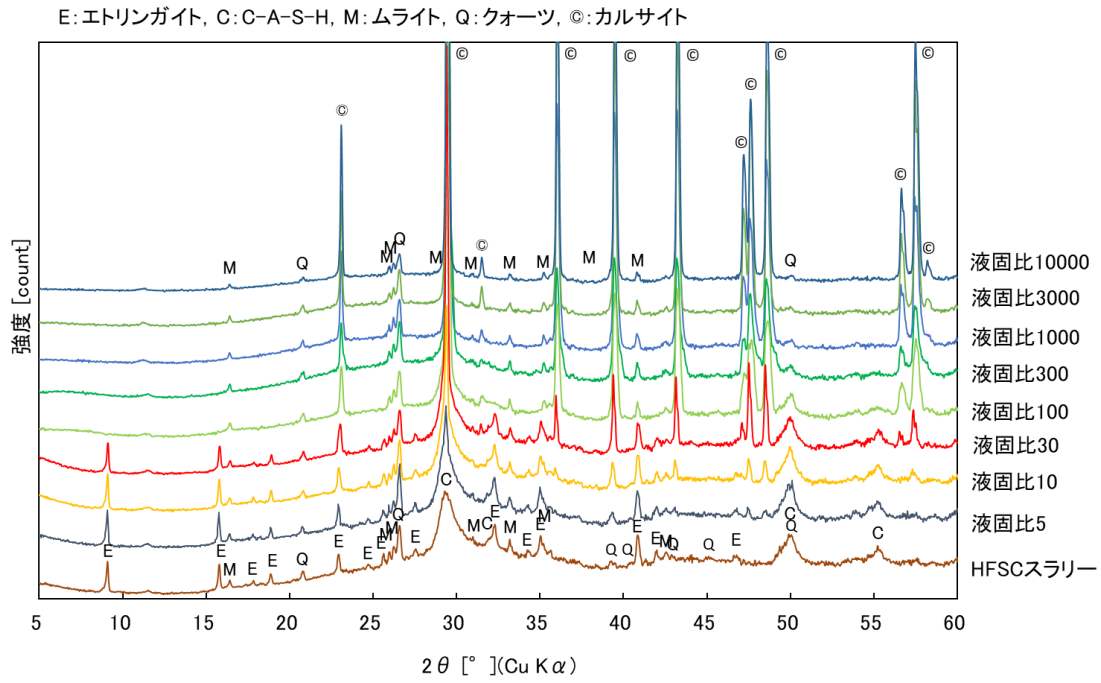


図 2.2-48 L/S = 2 kg/kgのIEW中で水和し、その後L/S = 5 kg/kgから10000 kg/kgの幌延地下水中で徐々に分解したHFSC424の粉末XRDパターン。

図 2.2.4-2[l]に示す鉱物組み合わせのシミュレーション質量分率は、一次鉱物のエトリンガイトと C-A-S-H ゲルの両方が溶解し、二次鉱物が方解石であるという点で、図 2.2.4-1 に示す XRD パターンと一致している。シミュレーションでエトリンガイトが L/S = 9 kg/kg で消失したのは、XRD で観察されたよりも急速なものであった。これは、エトリンガイトが C-A-S-H ゲルのコーティングによって保護されていることによる影響と考えられる。ポゾラン反応率が SF = 51%（表 2.2-35）と低いため、C-A-S-H ゲルのモル Ca/Si（C/S）比は 1.14 となり、SF = 80%、C/S 比 = 0.93 という典型的なポゾラン反応の程度とは対照的であった。一方で、L/S = 195 kg/kg でのシミュレーションで C-A-S-H ゲルが L/S = 195 kg/kg で消失したのは、XRD による L/S > 100 kg/kg での C-A-S-H ゲルの見かけの消失と一致していた。

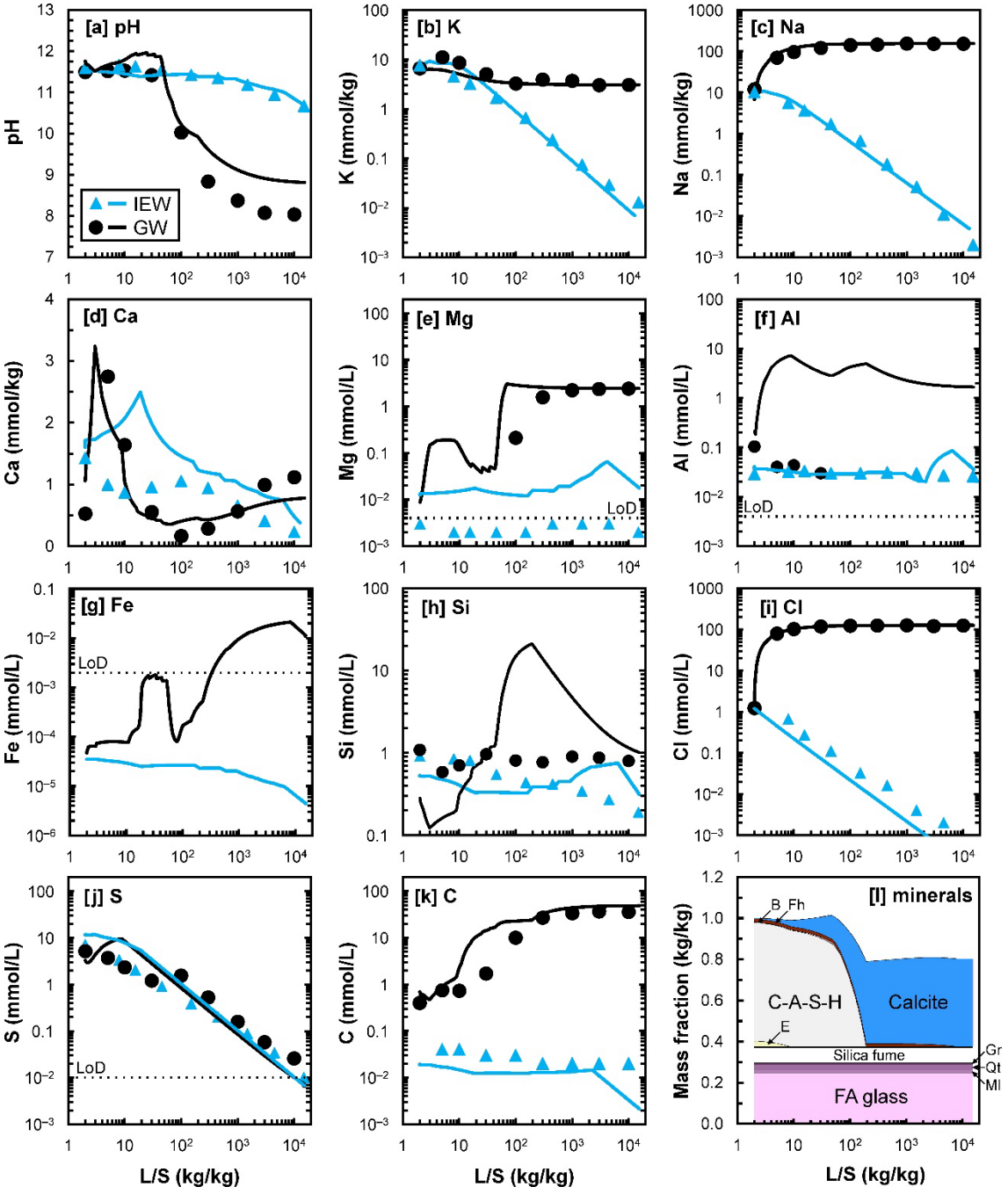


図 2.2-49　[a-k] IEW中で水和し、IEW（RWMC and JAEA, 2020）または幌延地下水（本研究）で水和・劣化させたHFSC424の実測組成（記号）とシミュレーション組成（実線）をL/S比（kg/kg）の関数として示す。[a] pH, [b] K (mmol/L), [c] Na (mmol/L), [d] Ca (mmol/L), [e] Mg (mmol/L), [f] Al (mmol/L), [g] Fe (mmol/L), [h] Si (mmol/L), [i] Cl (mmol/L), [j] S (mmol/L), [k] C (mmol/L). LoD = 検出限界。[l] L/S比(kg/kg)の関数として示された鉱物組み合わせのシミュレーション質量分率（kg/kg）。鉱物のラベル： B：ブルーサイト、Fh：フェリハイドライト、E：エトリンガイト、Gr：グラファイト、Qt：石英、Ml：ムライト。

図 2.2.4-2 には、L/S=2.0 の IEW 中で水和した HFSC424 と、L/S 比の増加に伴い幌延地下水中で分解した HFSC424（黒シンボル、黒線）の液相 pH と元素濃度の実験測定値およびシミュレーション値を示す。IEW 中での HFSC424 の分解（青シンボル、青線）も比較のために示した。

pH 値と元素濃度は相互に関連しており、C-A-S-H ゲルによる K と Na の取り込み、エトリンガイトと C-A-S-H ゲルの溶解、方解石の沈殿によって制御されている。

測定された pH 値は、シミュレーションとほぼ一致した（図 2.2.4-2 [a]）。L/S > 30 における pH=11.5 からの実測値の減少は、エトリンガイトと C-A-S-H ゲルの複合溶解による pH 緩衝能が喪失したことを示す。L/S = 9 でのエトリンガイトの消失のシミュレーションにより、L/S > 30 での pH の減少は、C-A-S-H ゲルの可変組成と溶解度挙動の変化に対応するものと考えられる。L/S 比が増加するにつれて pH は低下し、最終的に測定値は pH = 8.0、シミュレーション値は pH = 8.8 となった。計算より求めた pH = 8.8 は、表 2.2-39 に示したモデリング組成と一致しているが、0.8 単位の不一致は、幌延深層水の酸化還元状態が正しくシミュレートされなかった結果と考えられる。幌延地下水は一般に還元的であり、実測 Eh = -0.21 V である（Mochizuki et al., 2020）。分解試験中に酸化還元電位が維持されず、その結果 C と N 溶液中の H^+の生成によって以下のように酸性化する：

$$CH_4(aq) + 2\ O_2(aq) = HCO_3^- + H^+ + H_2O(l)$$
$$NH_4^+ + 2\ O_2(aq) = NO_3^- + 2\ H^+ + H_2O(l)$$

これらの酸化還元種を C と N の総濃度に合わせて変化させた結果、幌延 GW のシミュレーション pH は 9.2 から 6.1 となった。さらに、これらの酸化還元反応によって H^+が生成されると、HFSC424 に対する化学的攻撃がさらに促進される。実際の地下水を使用する際には、HFSC424 の分解に関する実験的研究およびモデル化研究に、酸化還元状態と pH および化学的攻撃に対するその潜在的影響を詳細に考慮する必要がある。

L/S 比 ＜ 10kg/kg における K と Na のアルカリ濃度は、C-A-S-H ゲルへの取り込みによって大きく制御される。$Kd_{,K}$ = 8.0 (mL/g)および $Kd_{,Na}$ = 10.6 (mL/g)の分配係数を用いることにより、測定されたアルカリ濃度とよく一致するシミュレーションが可能であり、初期 pH = 11.5 に重要な寄与を与える。L/S 比が増加し、L/S = 195 kg/kg での C-A-S-H ゲルの消失が顕著になると、アルカリ濃度は幌延地下水と同等になる（図 2.2.4-2 [b,c]）。

Ca、Al および Si の濃度は、L/S ＜ 30 kg/kg ではエトリンガイトの溶解と C-A-S-H ゲルの沈殿によって、L/S > 30 kg/kg では C-A-S-H ゲルの溶解と方解石の沈殿によって効果的に制御される。測定された Ca 濃度はシミュレーションとよく一致した（図 2.2.4-2 [d]）。しかし、測定された Al 濃度と Si 濃度は数桁の差があり、シミュレーションできなかった（図 2.2.4-2 [f,h]）。L/S ＞ 30kg/kg で Al が検出限界の 0.004mmol/L 以下まで減少している実測値は、全くシミュレートできなかった。測定された Al の減少は、XRD で観察されたエトリンガイトの消失と一致しており、C-A-S-H ゲルの変動する溶解挙動、または $Al(OH)_3$(mic)や Ca-ゼオライトのような溶解性の低い Al 含有相の沈殿の可能性を表している。しかし、そのような相の出現は XRD では同定されず、実験データとシミュレーションデータの全体的な一致を改善することはなく、いずれにせよ、測定された Al が 0.004 mmol/L 未満の幌延 GW に一時的に現れるだけであった。

Al 濃度と Si 濃度の実測値とシミュレー ション値との適合性の低さを改善するためには、C-A-S-H ゲルモデルのさらなる改良が必要であることは明らかである。C-A-S-H ゲルモデルは現在、一連の二元系固溶体モデルに基づいており、今後三元系以上の固溶体モデルに拡張される予定である。C-S-H と C-A-S-H ゲルには、sub-lattice 固溶体混合モデルを用いた同様のアプローチがすでに適用されているが（Gisby et al., 2007; Kulik et al., 2022; Myers, 2015）、これらは地球化学反応に関する JAEA TDB とは内部的に整合していない。

Mg 濃度の実測値とシミュレーション値はよく一致している（図 2.2.4-2 [e]）。L/S ＜ 100

kg/kg の Mg 濃度は、Mg ＜ 0.004 mmol/L の検出限界以下であり、シミュレーションで使用したブルーサイトよりも溶解性の低い鉱物によって緩衝されているはずである。L/S が 100 kg/kg を超える場合の Mg 濃度は緩衝されておらず、幌延地下水の濃度まで上昇する。

実測とシミュレーションの Fe 濃度は、L/S＜8301 kg/kg（図 2.2.4-2 [g]）で Fe＜0.002 mmol/L の検出限界以下である点でよく一致しており、シミュレーションではフェリハイドライトによって緩衝されている。L/S＝8301 kg/kg でのフェリハイドライトの溶解と消失により、幌延地下水からの Fe 添加に伴い Fe 濃度が上昇する。しかし、鉄濃度はこのような高いものと考えらえれ、現実的には測定が可能であったと考えられる。

実測とシミュレーションの Cl 濃度は見事に一致し（図 2.2.4-2 [i]）、幌延地下水の添加と一致した。幌延地下水の Cl = 124 mmol/L による HFSC424 への塩化物アタックの兆候は見られない。

S 濃度の実測値とシミュレーション値は、図 2.2.4-2 [j]とほぼ一致している。しかし、エトリンガイトの消失に伴う S 濃度の増加は、L/S＝9 kg/kg で予測されるが、L/S＞30 kg/kg で測定される。この不一致の最も可能性の高い理由は、エトリンガイトが C-A-S-H ゲルのコーティングによって保護されていることであるが、これは顕微鏡的方法では確認されておらず、そのような物理的制約はシミュレーションに含まれていない。エトリンガイトの消失後、S 濃度は希釈によって直線的に減少し、幌延 GW には S ＜ 1×10-2mmol/L が含まれていることに注目されたい。

実測とシミュレーションの C 濃度はよく一致し、幌延 GW の濃度まで増加した（図 2.2.4-2 [k]）。測定された C 濃度は方解石に対して過飽和であり、これは HFSC424 が幌延水に暴露された 28 日間と比較して、方解石の沈殿速度が比較的遅いこと（Thrailkill and Robl, 1980）で説明できる。このことは、L/S 比が高くなるにつれて Ca 濃度が徐々に上昇することにも寄与している（図 2.2.4-2 [d]）。

HFSC424 は、幌延地下水中の炭酸によって強く劣化することが示された。C-A-S-H ゲルの溶解は、溶解性の低い方解石が析出することにより促進され、その結果、HFSC424 からの C-A-S-H ゲルの溶解と消失がより速くなる。L/S = 195 kg/kg での C-A-S-H ゲルの消失は、0.002 M Na_2CO_3 中での L/S = 2306 kg/kg および IEW 中での L/S = 6485 kg/kg よりも有意に速い。

幌延地下水はまた、N(-3) = 6.1mmol/L の有意なアンモニウム濃度を含んでおり、これは実験中に一部または全部が硝酸塩に変換されたと考えられる。硝酸アンモニウムによるセメント系材料の腐食は、硝酸アンモニウムが肥料として使用される農業環境で知られている（Alexander et al., 2014）。この分解メカニズムが、本研究における HFSC424 の分解に一部関与している可能性がある。硝酸アンモニウムアタックの影響は、6.1 mmol/L 硝酸アンモニウムまたは同様の溶液中で HFSC の分解を行うことにより試験することができる。

HFSC424 のさらなる分解試験を、異なる濃度の単一塩類溶液、混合塩類溶液、地下水を使用し、異なる温度(例えば、20℃、50℃、80℃)で行う必要がある。異なる濃度を使用することで、異なる元素による劣化に対して、その影響が顕在化する濃度を定義することができる。混合塩は複合的な影響を評価するために必要であり、放射性廃棄物の地層処分に関連する温度は高くする必要がある。地下水の使用に関しては、地層処分相当の深度で見られるような還元状態の維持を必要としない場合には、合成法を使用し、適切な塩を溶解にさせることで代替が可能と考えられる。

②　高温条件における OPC の水和・浸漬試験

普通ポルトランドセメント（OPC）ベースの材料は、放射性廃棄物の地層処分において、処分場の建設に幅広く使用される。処分場の建設は、深いところで地下 300～1000m の深さで行われ

る予定である。これらの深さでは、地温 50℃程と予想されるが、放射線分解加熱によっては 100℃程まで上昇する可能性がある。一般的な建築に広く使用されているにもかかわらず、このような比較的高温での OPC ベースの材料の化学変化に関するデータはほとんどない。したがって、OPC ベースの材料の高温での劣化を制御する物理的および化学的プロセスに関する知識を提供するためには、さらなるデータ収集が必要である。

本研究では、イオン交換水（IEW）中で水和させた後の OPC ペーストの固相と液相の両方を、よく知られた標準的な試験温度である 20℃と、地層処分における OPC ベース材料の使用に関連する水和・劣化を評価することを目的とした 80℃、これら 2 ケースで特性評価を行った。異なる比較的高い液体／固体の質量比（L/S）＝1.0～5.0 で試験を実施したのは、主にサンプル回収を容易にするためであるが、これにより高温での初期段階の劣化を確認することも可能となる。

(a) OPC 水和・劣化試験

本研究で得られたデータは、観察された固相と液相の変化を記述する地球化学モデルの開発をサポートするものであり、さらには OPC ベースの材料の水和と劣化を制御する物理的・化学的プロセスを定量化・評価に活用できるものとなる。また、現在 50℃や 80℃で行われているセメントとベントナイトの接触試験(2.2.3 参照)の理解を深めるのにも役立つものとなる。

OPC クリンカーと IEW を前処理なしで使用し、20℃で 28 日間養生し、水和 OPC ペーストを作製した。その後、前述の水和 OPC ペーストを用いて、温度は 20℃と 80℃の 2 条件、液体／固体の質量比(L/S)=1.0(初期水和時は 0.5)、2.0、5.0kg/kg の 3 条件、合計 6 条件で水和を継続させた。試験条件の詳細を表 2.2-40 に示す。

表 2.2-40　OPC水和試験の条件一覧

Stage	Sample number	#1	#2	#3
1. Initial hydration period	L/S (kg/kg)	0.5	2.0 *	5.0 *
	temp (°C)	20	20	20
	Time (日)	28	28	28
2. Extended hydration period	L/S (kg/kg)	1.0 *,†	2.0 *	5.0 *
	temp (°C)	20 [a], 80 [a]	20 [b],80 [c]	20 [x], 80 [c]
	Time (日)	57	79	79

*：スラリー。†：サンプルは 5mm 以下に粉砕し、追加した IEW に分散させ、L/S=1.0 に調整。すべてのサンプルは振とうを継続しながら水和させ、混合と取り扱いは不活性雰囲気下のグローブボックス内で実施。a：固相と液相を分析。b：液相のみを分析。c：固相を XRD で分析。x：分析なし、スラリーの調製方法を確認するために実施。

すべてのサンプルは常時振とうさせながら水和させ、クリンカーと IEW の混合及び試料の取り扱いは不活性雰囲気下のグローブボックス内で行った。水和後、ろ過による固液分離を行い、以降に示す分析を実施した。

L/S=1.0、20℃および 80℃の試料に対しては、以下に示す方法で固相および液相を特性評価した。固相は、粉末 XRD（Malvern Panalytical 社製、X'Pert PRO MPD）を用いた結晶性水和鉱物の同定、および TG-DTA（Rigaku 社製、THERMO PLUS EVO2）を用いたポルトランダイトとカルサイトの定量によって評価した。液相は、pH（Horiba 6367-10D 電極と Horiba D-54 pH

メーター）および ICP-AES（Perkin Elmer Optima 8300）による K、Na、Ca、Si、Al、Fe、Mg、S の濃度測定、TOC（島津製作所 TOC-VCSH）による C の濃度測定、IC（DKK-TOA ICA-2000）による Cl の濃度測定によって評価した。

L/S=2.0、20℃の試料に対しては液相分析、L/S=2.0、80℃の試料に対しては固相分析、L/S=5.0、80℃の試料に対しては XRD 分析を実施し、その特性を評価した。

(b) OPC 水和シミュレーション

2.2.4(2)1)②(a)で観察された固相及び液相での変化を再現するために、PHREEQC（v3.7.3）（Parkhurst and Appelo、2013）と JAEA 熱力学データベース（TDB）（v2022）（JAEA、2018；Walker ら、2016）を用いた地球化学計算を実施した。

OPC の酸化物組成（wt.%）と強熱減量（ig.loss）をノルム計算に用いて、OPC の無水鉱物組み合わせを決定した（表 2.2-41）。

表 2.2-41 シミュレーションに使用したOPCクリンカーの組成（wt.%）と強熱減量（ig.loss、wt.%）

組成	wt .%	OPC クリンカー鉱物 *	wt.%
SiO_2	21.57	C3S	52.23
Al_2O_3	5.30	C2S_beta	22.38
Fe_2O_3	2.76	C3A	9.37
CaO	64.30	C4AF	8.40
MgO	1.95	Calcite	0.83
SO_3	1.95	Anhydrite	2.46
Na_2O	0.26	K2SO4(s)	0.77
K_2O	0.46	Na2SO4(s)	0.27
CO_2	0.365 †	K2O(s)	0.05
ig.loss	0.73	Na2O(s)	0.14
Total	98.915	Perilcase	1.95
		Total	98.915

* 鉱物名は JAEA TDB (v2022)の収録名を使用。†ig.loss の 50%と仮定（Hewlett, 2004; Le Saoût et al., 2013; Lothenbach et al., 2008; Pelletier-Chaignat et al., 2011; Schöler et al., 2015）。

表 2.2-41 に示す OPC クリンカー鉱物 1 kg を純水 1、2、5 kg と混合し、t= 20° C および 80° C で水和を解析した。解析の中で沈殿可能とした水和鉱物は、JAEA TDB (v2022)の収録名でそれぞれ、C-S-H gel (Ca/Si ratio = 1.65), ettringite, monosulfate_Al, monocarbonate_Al, katoite_Al (Si = 0-1 moles)(以下、カトアイト_Al), katoite_Fe (Si = 0.84), brucite, Friedel's salt_Al, afwillite (Ca/Si ratio = 1.5)の各鉱物である。カトアイト_Al の変動組成と溶解度挙動は、0 から 1 モルのケイ素を含む一連の離散固相としてモデル化した。C-S-H ゲルによる K と Na の取り込みは、Hong and Glasser (1999)に記載されている分配係数 Kd(mL/g)を用いてモデル化した。

(c)　結果

t=20℃で L/S=1.0、80℃で L/S=1.0、2.0、5.0 で水和した OPC の粉末 XRD パターンを図 2.2.4-3 に示す。

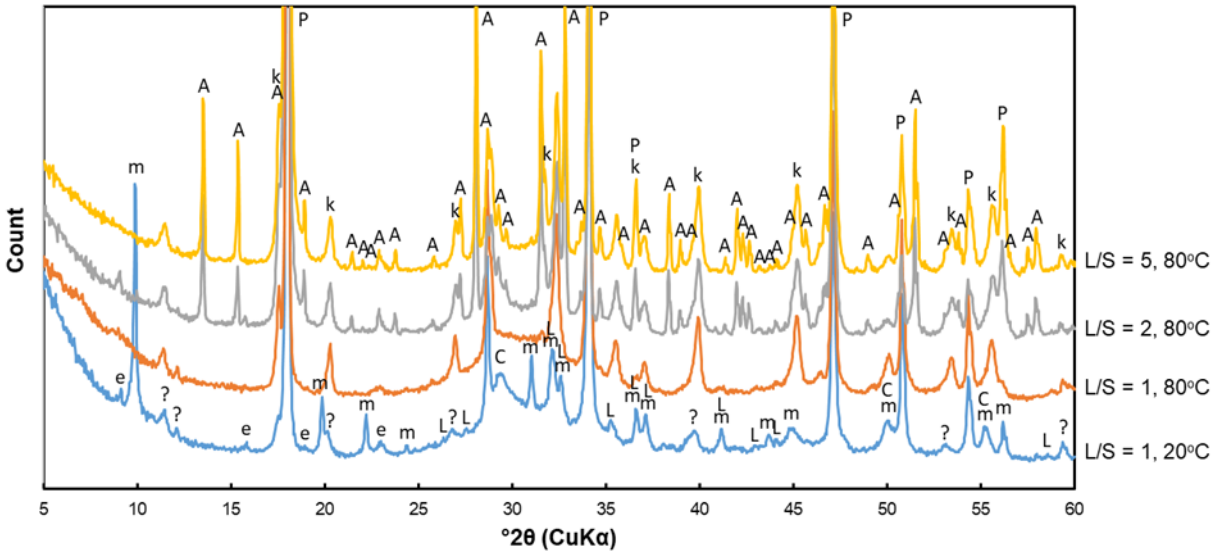


図 2.2-50　t=20℃、L/S=1で水和したOPCペーストのX線回折パターン、およびL/S=1、2、5で水和したOPCペーストの56日後の80℃におけるX線回折パターン。ピークの割り当て：e = ettringite, m = monosulfate, P = portlandite, L = belite, C = C-S-H gel, k = katoite, A = afwillite, ? = unknown.

L/S=1.0 の OPC を 20℃で水和させると、ポルトランダイト（TG-DTA で 22.1wt.%）、C-S-H ゲル、モノサルフェート、エトリンガイトが生成する。未反応のビーライト（β-Ca_2SiO_4）は、84 日間の水和後も存在する。未知のピークは、未反応のアルミノフェライト（$Ca_4Al_2Fe_2O_{10}$）、ハイドロタルサイト様相とカトアイトのいずれかまたは両方、これらの混合物であると考えられる。このような水和期間の短い OPC ペーストにカトアイトが形成されることは珍しい。TG-DTA で確認したところ、カルサイトは存在しなかった。

L/S=1.0 の OPC を 80℃で水和させると、ポルトランダイト（TG-DTA で 26.1 wt.%）の生成、C-S-H ゲルの非晶質化、モノサルフェートとエトリンガイトの消失、ビーライトの完全な水和、カトアイトの生成が確認された。カトアイトは高温で安定であり、XRD のピーク位置から組成が $Ca_3Al_2(SiO_4)0.90(H_2O)_{8.4}$ であると計算された。カトアイトはモノサルフェートとエトリンガイトの分解から生成され、C-S-H ゲルの非晶質化とポルトランダイトのさらなる沈殿に寄与すると考えられる：

monosulfate + 0.9 C-S-H (C/S = 1.65) + 2 OH^- = katoite (nSi = 0.9) + 2.485 portlandite + SO_4^{2-} + 10.22 H_2O(l)

これらの反応は 62℃以上の温度で生じやすくなる。上記の反応において生じる硫酸の消費先は、液相組成から評価することができる（表 2.2-42 参照）。

L/S=2.0 および 5.0 の OPC を 80℃で水和させると、L/S=1.0 の場合と同じ鉱物学的変化が起こるが、アフィライト($Ca_3Si_2O_4(OH)_6$、C/S 比=1.5)の沈殿が追加される。アフィライトは結晶性の CSH 鉱物であり、OPC を加熱することによって初めて同定された。したがって、アフィライトは、ジェナイトではなく、高温の OPC 中の C-S-H ゲルの類似鉱物と考えるべきである。C-

S-H ゲルからアフィライトが析出すると、ポルトランダイトがさらに析出することになる：

2 C-S-H (C/S = 1.65) = afwillite + 0.3 portlandite + 0.9334 H_2O(l)

20℃および 80℃で L/S=1.0、t=20℃で L/S=2.0 で含水させた OPC ペーストの液相特性を表 2.2-42 に示す。

表 2.2-42　20℃および80℃でL/S=1kg/kg、20℃でL/S=2kg/kgで水和させたOPCペーストの56日間水和後の溶液分析結果

Sample	pH measure		Concentration (mmol/L)									
	pH	*t* (℃)	K	Na	Ca	Mg	Al	Fe	Si	Cl-	S	無機 C
L/S = 1.0, 20°C	13.12	20.1	65.1	44.7	4.2	<0.004	0.07	<0.002	0.02	0.03	0.09	0.8
L/S = 2.0, 20°C	13.15	17.3	58.4	37.3	3.1	<0.004	0.06	<0.002	0.01	0.21	0.09	0.8
L/S = 1.0, 80°C	11.14	80.0	67.8	45.2	3.0	<0.004	0.11	<0.002	0.04	0.55	5.30	0.9

20℃における L/S=1.0 kg/kg と L/S=2.0 kg/kg の間の溶液組成のわずかな変化は、アルカリ希釈、ビーライトおよびおそらくアルミノフェライトの水和の程度の違い、pH を測定した温度の違いの範囲内であり、ほとんど重要ではないものである。しかし、Cl^-濃度の増加は明確ではなく、OPC クリンカー鉱物の水和の増加に起因する可能性が高い。

L/S=1.0kg/kg、20℃における OPC ペーストの水和シミュレーションは、Cl と C 濃度を除き、測定データと全体的によく一致した（表 2.2-43）。pH、K および Na 濃度は、C-S-H gel (C/S = 1.65)によるアルカリ元素の取り込みによって、Ca および Si 濃度は、それぞれポルトランダイトおよび C-S-H ゲルの溶解によって、大きく制御されている。Mg、Al、Fe、および S 濃度は、それぞれブルーサイト、katoite_AlSi08 (nSi = 0.8), katoite_FeSi084 (nSi = 0.84)、およびモノサルフェートによって制御されていると計算された。モノサルフェートのみが XRD で同定されたため、ブルーサイト、katoite_AlSi08 (nSi = 0.8)、katoite_FeSi084 (nSi = 0.84)は、これらの元素濃度を緩衝する役割のみを果たした。Cl 濃度は、OPC クリンカーの Cl 含有量が測定されていないため、ゼロとしてシミュレートした（表 2.2-41）。C 濃度は、XRD では monocarbonate-Al が同定されなかったにもかかわらず、monocarbonate-Al によって緩衝されるものと計算され、その結果解析値は測定値を下回って評価された。（図 2.2.4-3）。測定された 0.8 mmol/L の C 濃度は、カルサイト、monocarbonate-Al および hemicarbonate-Al に対して過飽和であることから、これらの沈殿速度が遅い、それに加えて高 pH での二酸化炭素の急速な溶解による汚染の結果である可能性がある。

しかし、L/S = 1.0、80℃では、pH と Ca 濃度の低下と、S、Cl-濃度の上昇が顕著である一方、K、Na、Mg、Al、Fe、Si、C 濃度はほとんど変化していない（表 2.2-42）。pH の低下は、温度の上昇と水のイオン化定数の変化が主な原因であり、OPC 水和物鉱物の温度による溶解度挙動の変化による寄与はわずかである。K と Na の濃度がほぼ変化がないことから、温度上昇に伴う C-S-H ゲルへの K と Na の取り込みにほとんど差がないことがわかる。Ca、Al、Si 濃度の違いは、それぞれポルトランダイト、カトアイト、C-S-H ゲルの溶解度挙動の変化を反映している。Mg と Fe 濃度は検出限界以下であり、濃度を制御する不溶性鉱物に大きな変化がないことを示している。Cl-濃度の増加は、OPC クリンカーの鉱物であるビーライトおよびおそらくアルミノフェライトの完全な水和に関係している可能性が高いが、マスバランス計算によると、測定された Cl-濃

度=0.55 mmol/L と一致させるには、OPC クリンカーの Cl=1.6 wt.%が完全に溶解する必要がある。S 濃度は、XRD（図 2.2.4-3）によって確認されたように、80℃でモノサルフェートとエトリンガイトの両方が消失したため、その増加が顕著である。しかし、測定された S 濃度＝5.3 mmol/L は、XRD で S を含む鉱物が存在しないと確認されたにもかかわらず、全硫酸の 98%が固相に残っていることを示している。このことは、硫酸がアモルファス硫酸カルシウムとして沈殿し、K と Na には影響しないものの C-S-H ゲルに取り込まれているか、あるいはカトアイトの構造、すなわち $Ca_3Al_2(SiO_4^{4-}, 4OH^-, 2SO_4^{2-})$に取り込まれている可能性が示唆される。

表 2.2-43　L/S=1kg/kgで20℃および80℃で水和したOPCペーストの液相の実測値とシミュレーション結果

Sample			Concentration (mmol/L)									
		pH	K	Na	Ca	Mg	Al	Fe	Si	Cl-	S	C
L/S = 1.0, *t* = 20°C	Measured	13.12	65.1	44.7	4.2	<0.004	0.07	<0.002	0.02	0.03	0.09	0.8
	Simulated	13.10	61.1	47.4	4.2	4.2E-5	0.05	9.2E-5	0.02	0	0.06	0.003
L/S = 1.0, *t* = 80°C	Measured	11.14	67.8	45.2	3.0	<0.004	0.11	<0.002	0.04	0.55	5.30	0.9
	Simulated	11.16	61.3	47.1	6.1	1.8E-7	0.12	5.7E-7	0.02	0	34.3	0.2

L/S=1.0kg/kg、80℃における OPC ペーストの水和シミュレーションでは、Ca、Cl、S、および C 濃度を除き、測定データと全体的に良好に一致した（表 2.2-43）。Ca 濃度の不一致は、ポルトランダイトの溶解度挙動が 0～300℃で非常によく知られていることを考えると、驚くべきことである。Cl-濃度の不一致は、やはりシミュレーションから Cl-を除外したことに起因する。S と C の濃度は、XRD ではピークが確認されていないが、それぞれアンハイドライトとカルサイトによって緩衝されているものとして解析されている（図 2.2.4-3）。固相中の硫酸の存在形態を決めるには、さらなる研究が必要である。アモルファス硫酸カルシウムは、C-S-H ゲルによる取り込みまたはカトアイトへの取り込みを示す S 濃度の測定値またはシミュレーション値よりもさらに高い溶解度を持つと予想される。測定された無機 C 濃度が 0.9 mmol/L と高かったのは、沈殿速度が遅いためか、高 pH での $CO_2(g)$の急速な溶解による大気汚染による影響が考えられる。

L/S=2.0 および 5.0kg/kg、80℃における OPC ペーストの水和シミュレーションでは、C-S-H ゲルまたはジェナイトの代わりにアフィライトの析出が予測された。L/S = 2 および 5 kg/kg、 80℃で水和した OPC ペーストの液相のシミュレーション結果を表 2.2-44 に示す。実験データとの比較はできないが、K および Na 濃度は希釈によって減少し、ポルトランダイトの溶解度は Ca 濃度の増加によって示され、それによってアフィライトの Si とカトアイトの Al を含む他の Ca を含む固相の溶解度が抑制されることを示している。

表 2.2-44　L/S=2.0および5.0kg/kg、80℃におけるOPCペーストの液相のシミュレーション結果

Sample	pH	Concentration (mmol/L)									
		K	Na	Ca	Mg	Al	Fe	Si	Cl-	S	C
L/S = 2.0, t = 80°C	11.04	30.4	36.7	8.4	2.4E-7	0.17	7.7E-7	0.003	0	22.6	0.009
L/S = 5.0, t = 80°C	10.89	10.8	13.1	11.8	3.3E-7	0.13	5.4E-7	0.003	0	9.9	0.008

本検討から、OPC ペーストの 80℃の水和における鉱物組み合わせについて、新たな知見を得ることができた。水和シミュレーションを試行的に実施したところ、Ca 濃度については大きな不一致があったため、原因を明らかにする必要がある。また、水和後の劣化をシミュレーションすることを目的に、液固比を高めた試験を実施する必要性が示された。

OPC 同様、HFSC424 についても同様の高温試験を実施することにより、多くの知見が得られると考える。試験の実施により、シリカフュームとフライアッシュのポゾラン反応増加の可能性、HFSC が高温または長期の劣化を受けてトバモライト-Al が析出する可能性、C/S 比が 1.0 より低い C-A-S-H ゲルによるアルカリの取り込みへの影響、HFSC におけるカトアイト形成の可能性、固相における S の挙動、これらに関する知見が得られるものと期待される。

① セメント構成物質の合成およびキャラクタリゼーション

(a) セメント水和物等の熱量測定

フライアッシュ高含有シリカフュームセメント（HFSC）のイオン交換水中での水和では、結晶性の水和相としてアルミノケイ酸カルシウム水和物 （C-A-S-H）ゲルとエトリンガイトが生成する（JAEA, 2012; JAEA, 2016; RWMC and JAEA, 2019; RWMC and JAEA, 2020; RWMC and JAEA, 2021; RWMC and JAEA, 2022）。C-A-S-H ゲルおよびエトリンガイトの生成と溶解は、HFSC424 の水和および劣化によって変化する液相組成をコントロールすると考えられる。放射性廃棄物の地層処分で扱う温度条件や時間スケールにおいては、C-A-S-H ゲルは結晶性の高い鉱物である Al 置換トバモライトに変化すると予想されている。

また、普通ポルトランドセメント(OPC)の水和では、ケイ酸カルシウム水和物（C-S-H）ゲルが主たる水和相として生成する。これまでに、C-S-H ゲルを出発物質とし、処分環境で想定されるような温度条件や反応期間を模擬した加熱試験を行い、C-S-H 鉱物の一種であるトバモライト（底面間隔が 11Å及び 14Å、Al を含まない）の生成条件を確認してきた(RWMC and JAEA, 2023)。

以上のように、HFSC および OPC の液相組成は、それぞれ Al 置換トバモライト、Al を含まないトバモライトの溶解によって長期的にコントロールされると予想されることから、温度を関数としたこれらのトバモライト鉱物の溶解挙動の変化を、エントロピーS（cal/K/mol）と熱容量Cp（cal/K/mol）によって表現することを試みた。

本研究では、JAEA にて 11Å トバモライトと 14Å トバモライトを合成し、大阪大学にて TG-DTA を用いた含水率測定、断熱型熱容量測定装置（Kume et al., 1992）および緩和型熱容量測定装置（Quantum Design 社製、PPMS: Physical Properties Measurement System）を用いた、T = 1.9-380 K での熱容量測定を行った。測定された熱容量は、T = 298.15 K での値を与えるように補間した。エントロピーは、台形則を用いて以下の式を解くことによって求めた。

$$S^{\circ} = \int_{0K}^{298.15K} (C_P/T) \cdot dT \qquad \text{式(2.2-1)}$$

本研究の結果は、地球化学反応に関する熱力学データベース JAEA TDB に追加予定である。

(i)11Å トバモライトと 14Å トバモライトの合成方法

直接反応法を用いて、表 2.2-45 に示すように、目標とする C/S 比に応分のモル量の CaO と SiO_2 を超純水に混合し、11Å トバモライトと 14Å トバモライトを合成した。11Å トバモライトは 120℃で 28 日間、14Å トバモライトは 60℃で 77 日間の反応後、固相と液相を遠心分離とろ過で分離した。固相サンプルは、イソプロパノールで洗浄し、Ar ガス雰囲気のグローブボックスで保管した。

表 2.2-45　11Åトバモライトと14Åトバモライトの合成方法

Reagents	・CaO:　（関東化学製 酸化カルシウム, 3N） ・SiO_2: Aerosil200　（日本アエロジル製） ・H_2O: PURELAB flex >18 MΩ·cm
Target C/S ratio	0.834
Target A/S ratio	0
L/S ratio	20
Reaction time	11Å tobermorite: 28 days 14Å tobermorite: 77 days
Reaction temperature	11Å tobermorite: 120°C 14Å tobermorite: 60°C
Conditions	Sealed vessel, shaken manually.

(ⅱ)11Å トバモライトと 14Å トバモライトの熱量測定

熱容量測定は、PPMS を用いて 1.8-100.7 K で、LTAC を用いて 36.3-380 K で行った。

DT-TGA 分析により、合成した 11Å トバモライトから 9Å トバモライトへの相変化が確認された。これにより、通常タイプの 11Å トバモライトが合成できたことが確認された。11Å トバモライト試料は、650℃までに 11.8 wt.%の水分を失った。これは、5.3 モルの水分に相当することから、理想的な化学組成は $Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2$ $5H_2O$(分子量は 748.98448 g/mol)であると推定された。なお、Ca と Si の含有量は、XRF または $LiBO_2$ 溶融法による分析で確認する必要がある。

11Å トバモライトの低温熱容量測定を図 2.2.4-4 に示す。

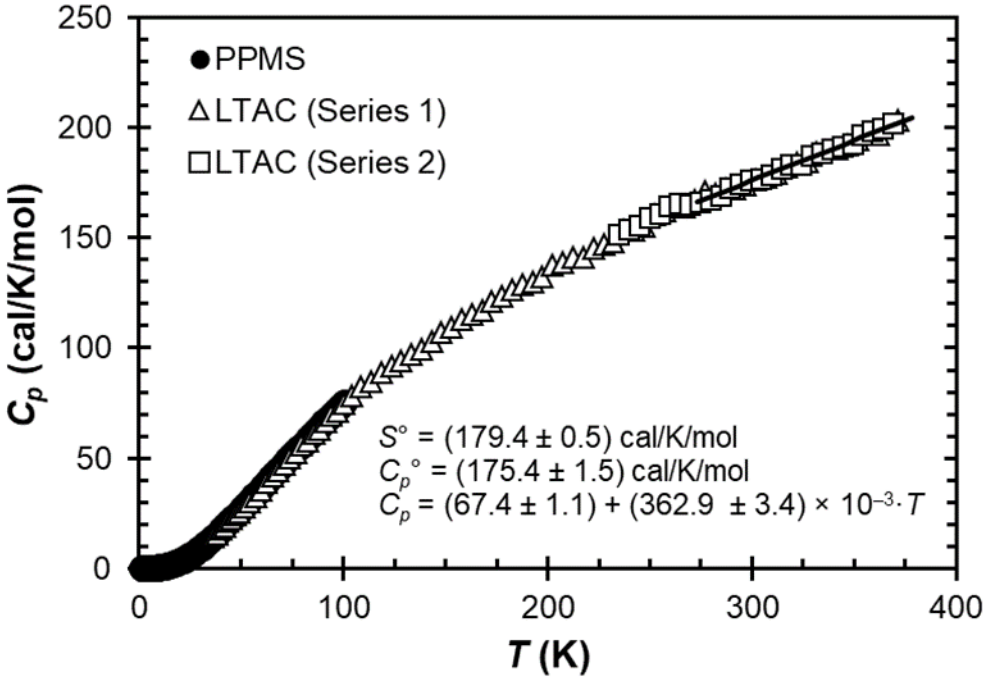


図 2.2-51　11Åトバモライトの低温熱容量測定結果。直線はT = 273.15-373.15 Kの区間において最もフィットするもの。

DT-TGA 分析によると、14Å のトバモライト試料は 650℃までに 16.4 wt.%の水分を失った。これは、7.2 モルの水分に相当することから、理想的な化学組成は $Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 7H_2O$ (分子量は 785.01504 g/mol)であると推定された。この組成は、Bonaccorsi et al. (2005)で構造精密化によって得たものと同一であるが、Sarkar et al. (1982)で報告された 14Å トバモライト組成に基づく現在 JAEA TDB (JAEA, 2018; Walker et al., 2016)に記載の $Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 9.5H_2O$ とは異なる。この場合も、Ca と Si の含有量は、XRF または $LiBO_2$ 溶融法による分析で確認する必要がある。

14Å トバモライトの低温熱容量測定を図 2.2.4-5 に示す。

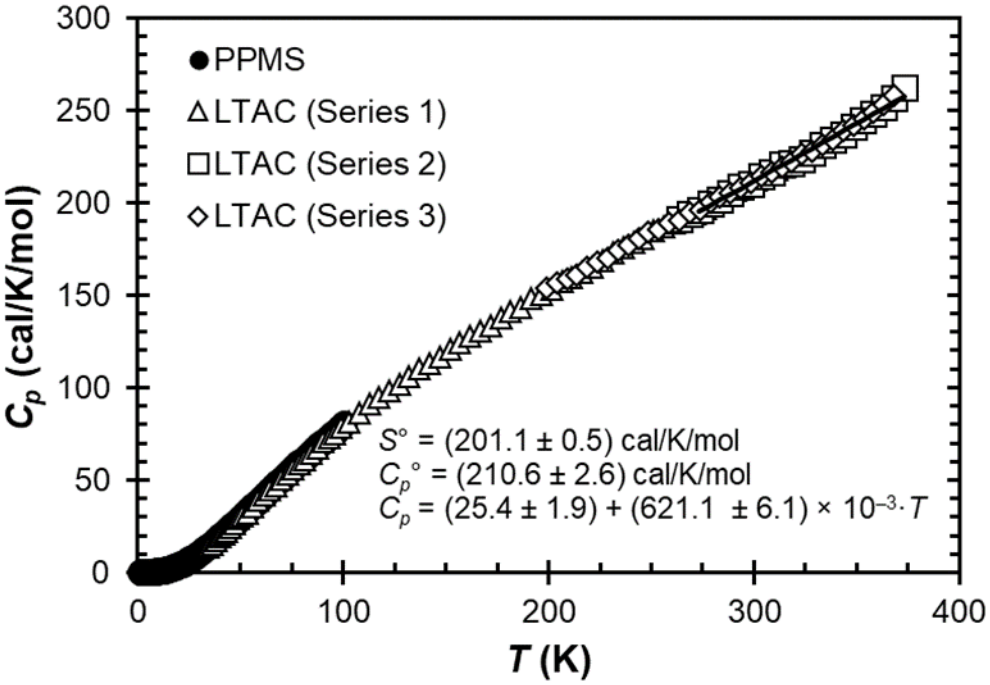


図 2.2-52　14Åトバモライトの低温熱容量測定結果。直線はT ＞ 273.15 Kの区間において最もフィットするもの。

(b)　トバモライトの熱力学データの導出

(i)11Å トバモライト

T= 273.15-373.15 K で測定された Cp 値の線形相関から、Cp = (67.4±1.1) + (362.9±3.4) × 10^{-3}·T となり、$Cp°$(11Å トバモライト、298.15 K) = (175.4 ± 1.5) cal/K/mol と補間された。台形法を用いて式(2.2-1)を解くと、$S°$(11Å トバモライト, 298.15 K) = (179.4 ± 0.5) cal/K/mol となった。

これらの値は、JAEA TDB（JAEA, 2018; Walker et al., 2016）に現在記載されている $Cp°$= 182.8 cal/K/mol と $S°$= 165.2 cal/K/mol とほぼ同様の値であるが、JAEA TDB での値は、不確かさの記載がなく、Cp は一定であると仮定し、Blanc et al., (2010)によって開発された CSH 鉱物の相間関係を記述するために使用されるポリヘドラルモデルに基づいた値であることを考慮すると、より信頼性が高いものであると言える。

11Å トバモライトの溶解は、t = 25℃で推定 log K = 63.37 を用いて以下となる。

$$Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 5H_2O + 10H^+ + H_2O(l) = 5\ Ca^{2+} + 6\ Si(OH)_4(aq) \qquad 式(2.2\text{-}2)$$

また、14Å トバモライトから 11Å トバモライトへの相変化は、Maeshima et al., (2003)によれば、t = 105 ℃で log K = 0 であることから以下となる。

$$Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 7H_2O = Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 5H_2O + 2H_2O(l) \qquad 式(2.2\text{-}3)$$

11Å トバモライトの単位胞パラメーターは、Merlino et al., (2001)による構造の精密化結果か

ら、a = 6.732 Å, b = 7.368 Å, c = 22.680 Å, γ = 123.18° (Z = 2)とし、これらの値から、11Å トバモライトの熱力学的性質と Maier-Kelly 係数を計算した(表 2.2-46)。

表 2.2-46 11Åトバモライトの熱力学的性質とMaier-Kelley係数。

Property	Value	Method
$\Delta_f G°$ (kcal/mol)	–2394.9	Phase relations (Blanc et al., 2010; Maeshima et al., 2003)
$\Delta_f H°$ (kcal/mol)	–2588.3	$\Delta_f H° = \Delta_f G° + 298.15 \cdot \sum v \cdot S°$ *
$S°$ (cal/K/mol)	(179.4 ± 0.5)	Low temperature calorimetry
$C_p°$ (cal/K/mol) †	(175.4 ± 1.5)	“
a (cal/K/mol)	(67.4 ± 1.1)	“
$10^3 \cdot b$ (cal/K^2/mol)	(362.9 ± 3.4)	“
$10^{-5} \cdot c$ (calK/mol)	0	“
$V°$ (cm^3/mol)	283.505	Merlino et al., (2001)

* Cox (1978)から引用した、基準状態における元素のエントロピーを使用。$C_p = a + b \cdot T + c \cdot T^{-2}$, T はケルビン単位。

(ⅱ)14Å トバモライト

T = 273.15-373.15 K で測定された Cp 値の線形相関から、Cp=(25.4±1.9)+(621.1±6.1)×10^{-3}·T となり、$Cp°$(14Å トバモライト、298.15 K)= (210.6±2.6) cal/K/mol と補間された。台形法を用いて式(2.2-1)を解くと、$S°$(14Å トバモライト, 298.15 K) = (201.1 ± 0.5) cal/K/mol となった。

これらの値も、JAEA TDB（JAEA, 2018; Walker et al., 2016）に現在記載されている $Cp°$= 232.7 cal/K/mol と $S°$= 208.6 cal/K/mol とほぼ同様の値であるが、JAEA TDB での値は、不確かさの記載がなく、Cp は一定であると仮定し、Blanc et al., (2010)によって開発された CSH 鉱物の相間関係を記述するために使用されるポリヘドラルモデルに基づいた値であることを考慮すると、より信頼性が高いものであると言える。

14Å トバモライトの溶解は、t = 25℃での推定 log K = 62.73 (Blanc et al., 2010)を用いて以下となる。

$$Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2(H_2O)_7 + 10\ H^+ = 5\ Ca^{2+} + 6\ Si(OH)_4(aq) + H_2O(l) \qquad 式(2.2\text{-}4)$$

14Å トバモライトの単位胞パラメーターは、Bonaccorsi et al., (2005）による構造の精密化結果から、a = 6.735 Å, b = 7.425 Å, c = 27.987 Å, γ= 123.25°（Z = 2)とし、これらの値から、14Å トバモライトの熱力学的性質と Maier-Kelly 係数を計算した(表 2.2-47)。

表 2.2-47　14Åトバモライトの熱力学的性質とMaier-Kelley係数。

Property	Value	Method
$\Delta_f G°$ (kcal/mol)	–2509.2	Phase relations as determined by (Blanc et al., 2010)
$\Delta_f H°$ (kcal/mol)	–2729.3	$\Delta_f H° = \Delta_f G° + 298.15 \cdot \sum v \cdot S°$
$S°$ (cal/K/mol)	(201.1 ± 0.5)	Low temperature calorimetry
$C_p°$ (cal/K/mol)	(210.6 ± 2.6)	“
a (cal/K/mol)	(25.4 ± 1.9)	“
$10^3 \cdot b$ (cal/K^2/mol)	(621.1 ± 6.1)	“
$10^{-5} \cdot c$ (calK/mol)	0	“
$V°$ (cm^3/mol)	352.451	Bonaccorsi et al., (2005)

(iii)まとめ

表 2.2-46 および表 2.2-47 に示した 11Å トバモライトと 14Å トバモライトの熱力学的特性から、14Å トバモライトから 11Å トバモライトへの相変化式(2.2-3)が log K = 0 となる温度を求め、Maeshima et al., (2003)が log K = 0 になると測定した t = 105 ℃と比較したところ、良好な一致が確認された（図 2.2.4-6）。

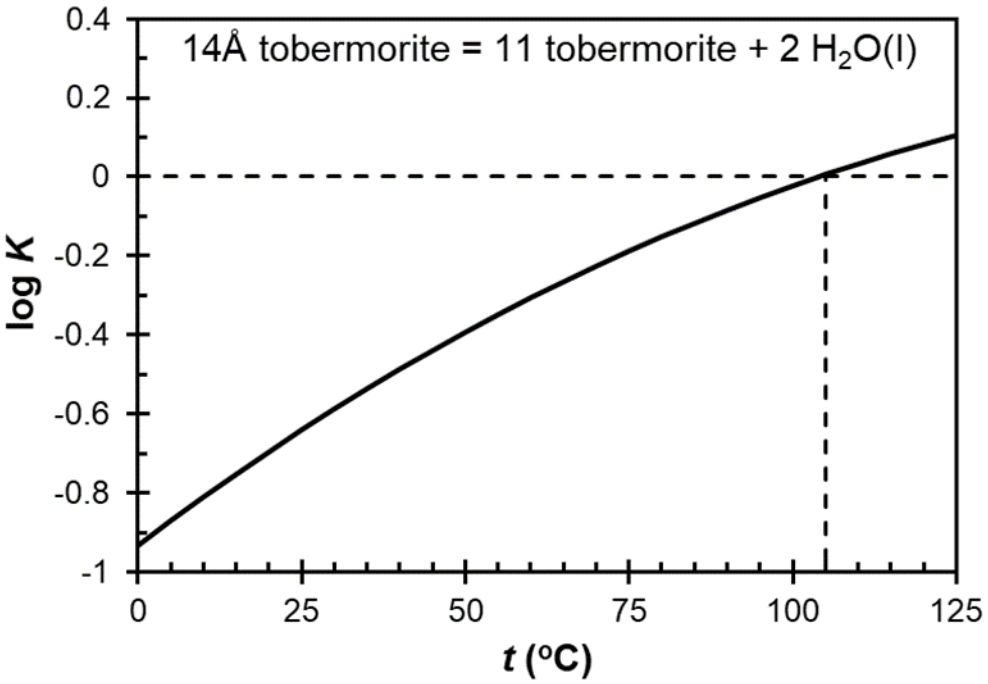


図 2.2-53　表 2.2-46および表 2.2-47のデータを用いて計算した反応(式(2.2-3))のlog K = 0と、実測のt = 105 ℃(Maeshima et al., 2003)の比較結果。

本研究では、11Å トバモライトと 14Å トバモライトの熱容量とエントロピーをそれぞれ測定した。これらのデータは、既知の 14Å トバモライトから 11Å トバモライトへの t = 105 ℃における相変化式(2.2-3)とよく一致した。

今後は、放射性廃棄物の地層処分で評価が重要となる C-A-S-H ゲルや Al 置換トバモライトなどについても同様の低温熱容量測定を適用する。また、温度の関数としての C-A-S-H ゲルから Al 置換トバモライトへの相変化についても、長期的な液相変化を評価することを目的に調査する必要がある。

2)　深部地下環境を対象とした試験

①　供試体の採取および試験・分析

(a)　定置供試体

(1) で記載の通り、令和 2 年度に、幌延深地層研究センターの地下施設に施工されている HFSC 吹付けコンクリート支保工と同様の配合で HFSC 供試体（直径 50 mm、高さ 100 mm）を作製し、物性等の長期的な経年変化を把握するために随時採取が可能な状態で坑道内に定置した（図 2.2.4-7 ; 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, 2023a）。令和 5 年度は、同供試体の一部を採取し、試験・分析に供した。採取した供試体は、試験に供するまで 20±3℃の恒温室において、大気中または地下施設から採取した原位置地下水中で養生した。

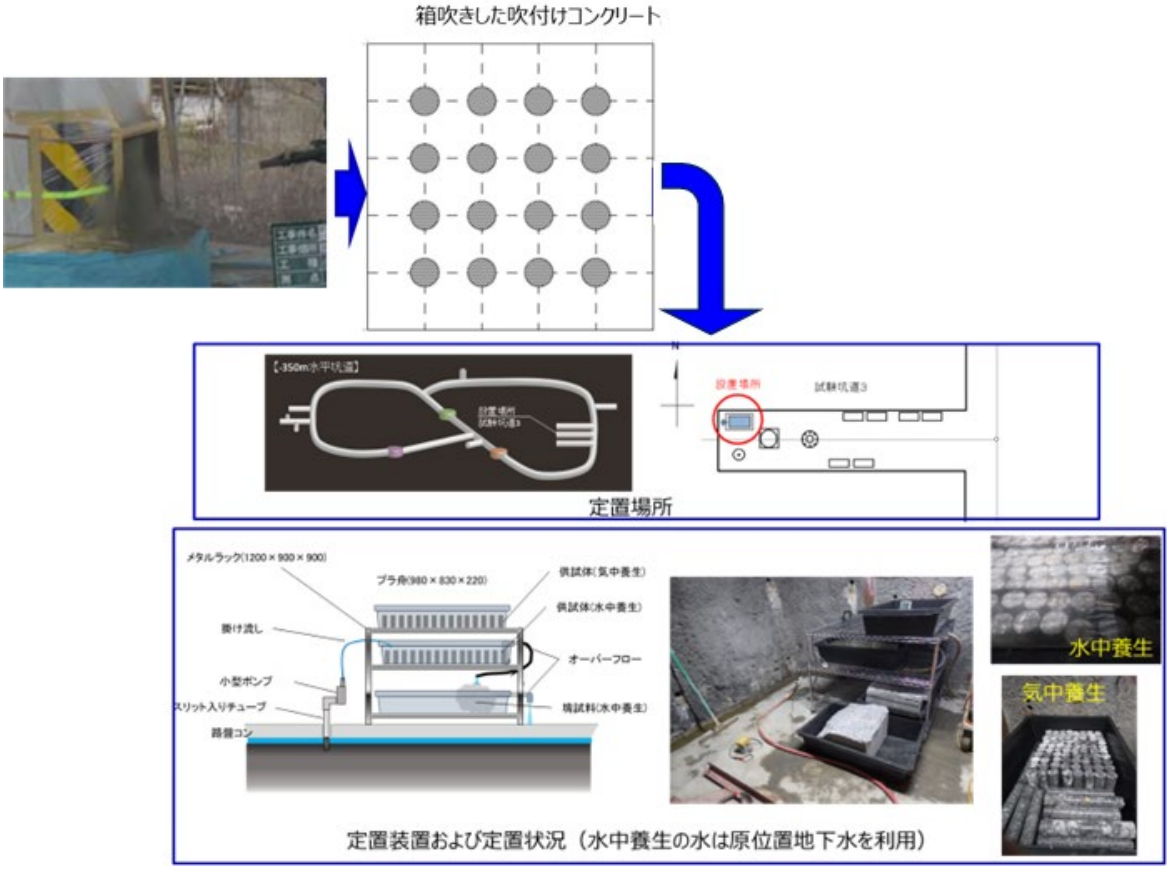


図 2.2-54　作製した吹付けコンクリート供試体の定置養生の状況

試験・分析項目の一覧および供試体の割り当てを表 2.2-48 および表 2.2-49 に示す。一軸圧縮強度および弾性波速度は、定置養生されている供試体をそのまま用い、弾性波速度の測定後に同一の供試体に対して一軸圧縮試験を行った。圧裂試験、中性化深さ、空隙率測定、電子線マイクロアナライザー分析（EPMA）および走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分析（SEM/EDS）については、一つの供試体を高さが半分の 50 mm となるように切断し、片方で圧裂試験を行い、もう片方の供試体から空隙率、中性化深さ、EPMA および SEM/EDS 用の試料を採取した。空隙率測定用の試料は、供試体の表面から 5 mm 程度までを削り取って採取した。透水試験については、供試体を高さ 50 mm または 25 mm となるように切断してから実施した。25 mm となるように切断した試料のもう一方は、水分量測定に使用した。

空隙率測定、EPMA および SEM/EDS、水分量測定については、大気または地下水との長期の

接触により変質が認められる表面の部分（中性化している部分。以降、変質部）とそれより奥の部分（健全部）との違いを確認可能なように試料を採取した。透水試験についても、変質部から通水するケースと健全部から通水するケースに分けて実施した。

表 2.2-48　気中養生した定置供試体の識別番号と分析項目の一覧

項目			供試体の識別番号と分析項目								分析点数	
試料形状	試験項目		1	2	3	4	5	6	7	8		
φ50×100mm	一軸圧縮試験※1		○	○	○						3	
	弾性波速度※1		○	○	○							
φ50×50mm	圧裂試験					○	○	○			3	
φ50×50mm（半割）	中性化深さ					○	○	○			3	
φ50×50mm（半割）から試料を採取	空隙率	変質部				○	○	○			3	6
		健全部				○	○	○			3	
	EPMA マッピング（外縁部から変質部を含むように）					○					1	
	SEM/EDS（外縁部から変質部を含むように）					○					1	
φ50×50mm	透水試験（アウトプット法）	変質面							○		1	2
		健全面							○		1	
φ50×25mm	透水試験（地盤工学会）	変質面								○	1	1
		健全面									0	
φ50×25mm	水分量	変質部								○	1	2
		健全部								○	1	

※1：弾性波測定および一軸圧縮試験は同一供試体を使用

表 2.2-49　水中養生した定置供試体の識別番号と分析項目の一覧

項目			供試体の識別番号と分析項目								分析点数	
試料形状	試験項目		1	2	3	4	5	6	7	8		
φ50×100mm	一軸圧縮試験※1		○	○	○						3	
	弾性波速度※1		○	○	○							
φ50×50mm	圧裂試験					○	○	○			3	
φ50×50mm（半割）	中性化深さ					○	○	○			3	
φ50×50mm（半割）から試料を採取	空隙率	変質部				○	○	○			3	6
		健全部				○	○	○			3	
	EPMA マッピング（外縁部から変質部を含むように）					○					1	
	SEM/EDS（外縁部から変質部を含むように）					○					1	
φ50×50mm	透水試験（アウトプット法）	変質面							○		1	2
		健全面							○		1	
φ50×25mm	透水試験（地盤工学会）	変質面									0	0
		健全面									0	
φ50×25mm	水分量	変質部								○	1	2
		健全部								○	1	

※1：弾性波測定および一軸圧縮試験は同一供試体を使用

(b)　吹付け支保工

定置供試体が養生されている 350 m 坑道の試験坑道 3 壁面より、実際の坑道に施工されている HFSC 吹付け支保工コンクリートのコア試料を計 25 本採取した（図 2.2.4-8）。試験坑道 3 の吹付け支保工の施工は 2013 年 7 月に行われており、施工から約 10 年が経過していた。直径 50 mm のコアを乾式ボーリングにて採取し、採取後ただちにラップおよびビニール袋で覆って試験・分析まで保管した。分析項目は定置供試体と同様であり、その一覧を表 2.2-50 に示す。

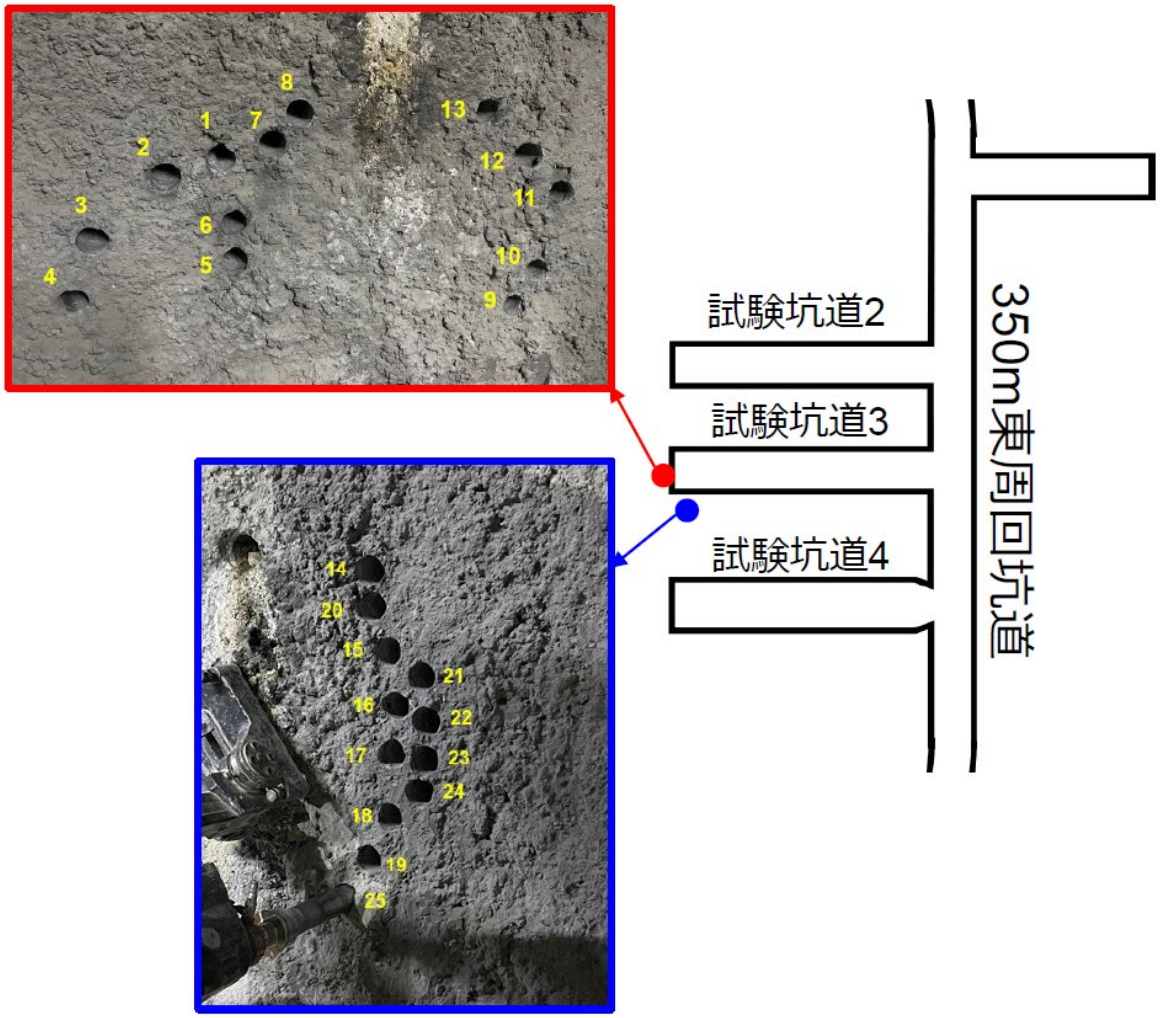


図 2.2-55　コア試料採取場所

表 2.2-50　地下施設から採取した支保工供試体の識別番号と分析項目の一覧

項目			供試体区分と分析項目																									
試料形状	試験項目		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	分析点数
φ50×100mm	一軸圧縮・弾性波速度	坑道側				○					○																○	2×3 本
		岩盤側									○													○		○		
φ50×50mm	圧裂試験	坑道側															○	○			○							2×3 本
		岩盤側															○	○			○							
φ50×50mm（半割）	中性化深さ※1			○				○						○						◆			◆					3 本
	水分量	坑道側					○	○								○												3×3 本
		中央部					○	○								○												
		岩盤側					○	○								○												
φ50×50mm（半割）から試料を採取	空隙率※2	坑道側		○				○						○														3×3 本
		中央部		○				○						○														
		岩盤側		○				○						○														
	EPMA	坑道側		○				○						○														2×3 本
		岩盤側		○				○						○														
	SEM/EDS	坑道側		○				○						○														2×3 本
		岩盤側		○				○						○														
φ50×50mm	透水試験（アウトプット法）※3	坑道側							○	▲		○													○			2×3 本
		岩盤側							○	▲		○													○			
φ50×25mm	透水試験（地盤工学会）	坑道側				○							○									○						2×3 本
		岩盤側				○							○									○						

※1：◆は中性化深さのみ測定
※2：No.2 の空隙率は、中央部を「中央健全部」から採取、岩盤側を「中央変質部」から採取
※3：▲は予備検討に使用

(c)　試験・分析方法

各項目の試験・分析方法は、定置から 2 年後までの定置供試体に対して実施してきた方法（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, 2023a）と同様である。以下では、同文献内に記載のない水分量測定の方法のみ示す。

定置供試体の水分量測定には、円柱供試体を切断して採取した高さ 25 mm の供試体を用い、端部を含む変質部と両端が切断部となる健全部の 2 ケースで測定した。吹付け支保工供試体は、

採取コアをたがねとハンマーで坑道側、中央部、岩盤側に 3 分割し、それぞれ水分量を測定した。測定は JIS A 1476「建築材料の含水率測定方法」に準拠した。供試体の重量減少が収束するまで 105℃で乾燥させ、収束した際の重量減少量を蒸発した水分量として、含水率を算出した。

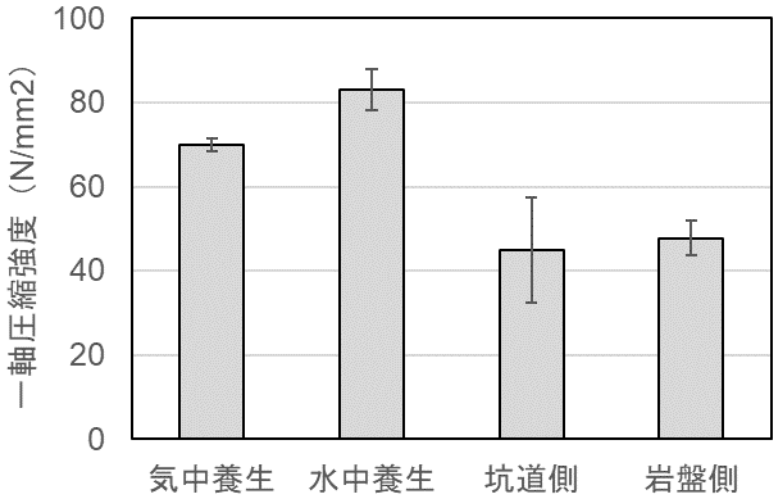
②　結果

(a)　強度特性

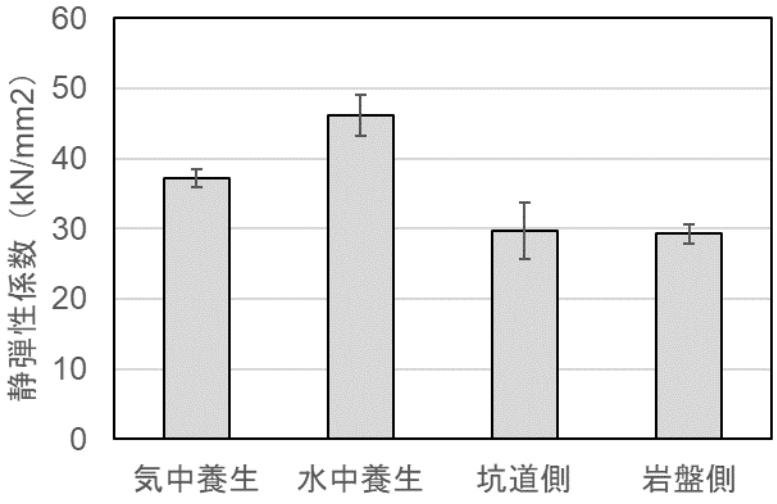
定置供試体（気中養生、水中養生）および吹付け支保工供試体（坑道側、岩盤側）について、一軸圧縮強度、静弾性係数、ポアソン比、P 波速度、S 波速度、動ポアソン比、動せん断弾性係数、動弾性係数、割裂引張強度の測定結果（平均値±標準誤差）を図 2.2.4-9 に示す。定置供試体における静弾性係数、P 波速度および動ポアソン比の平均値は、気中養生試料よりも水中養生試料の方が統計的に有意に大きかった（有意水準 $p = 0.05$；以下、断りのない限り同様の有意水準）。気中養生よりも水中養生の方がコンクリート中の間隙に水分が満たされた状態であるため、水和反応が促進され、強度や緻密さが増加したと考えられる。それ以外の項目は、水中養生試料の方が平均値の大きいものが多かったが、エラーバーが重複しており統計的に有意な差は認められなかった。

吹付け支保工供試体では、動ポアソン比のみ坑道側の試料の値が岩盤側の試料の値に比べて有意に大きかったが、それ以外の項目では両者に有意な差があるとは言えなかった。一方、定置供試体の気中養生試料と支保工供試体の坑道側試料を比較した場合、P 波速度、S 波速度、動ポアソン係数、動せん断弾性係数および動弾性係数は気中養生試料の方が有意に大きかった。また、定置供試体の水中養生試料と支保工供試体の岩盤側試料を比較すると、一軸圧縮強度、静弾性係数、P 波速度、S 波速度、動せん断弾性係数および静弾性係数は水中養生試料の方が有意に大きかった。定置供試体の方が、実際の吹付け支保工と比べると構造的に密で強度もより大きい状態にあることが示唆される。ただし、定置供試体は作製から約 3 年、吹付け支保工供試体は施工から約 10 年と、材齢が異なることにも留意する必要がある。

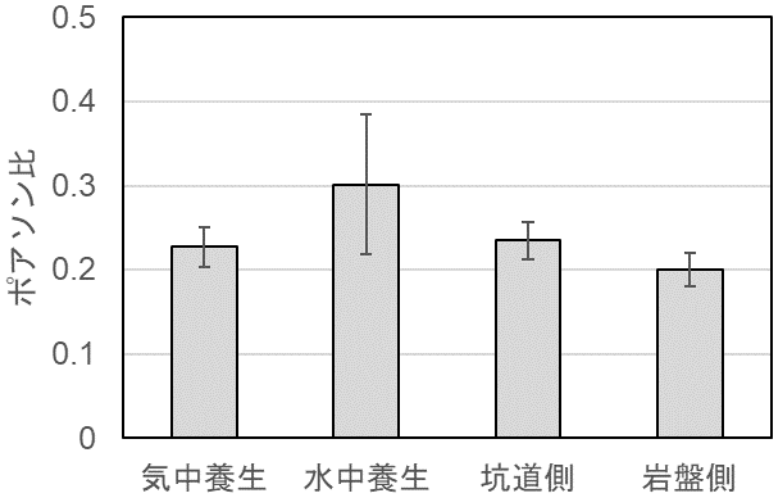
一軸圧縮強度、静弾性係数および割裂引張強度では、エラーバーの大きさからわかるように、吹付け支保工供試体の測定値のばらつきが相対的に大きかった。施工時の不均質性や、供試体の大きさが比較的小さいため骨材・空隙の分布のばらつきによる影響が大きいと考えられる。



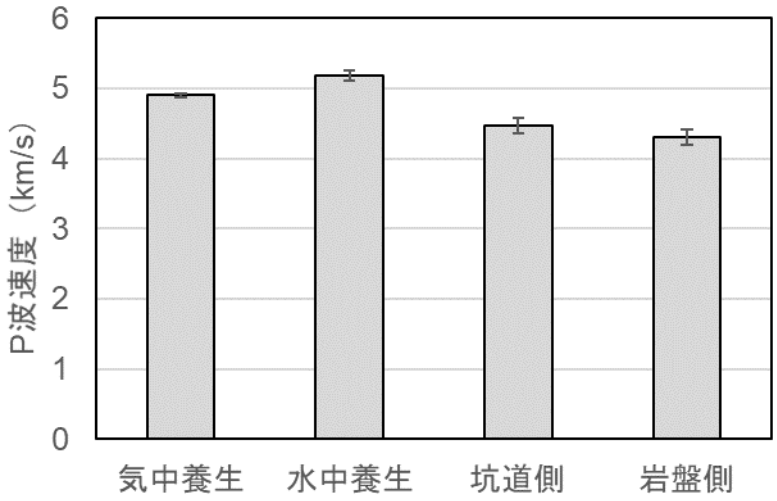
(a)　一軸圧縮強度



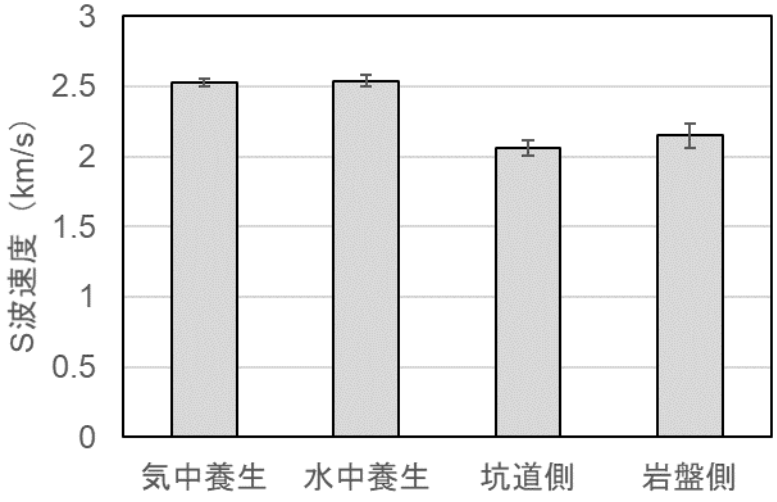
(b)　静弾性係数



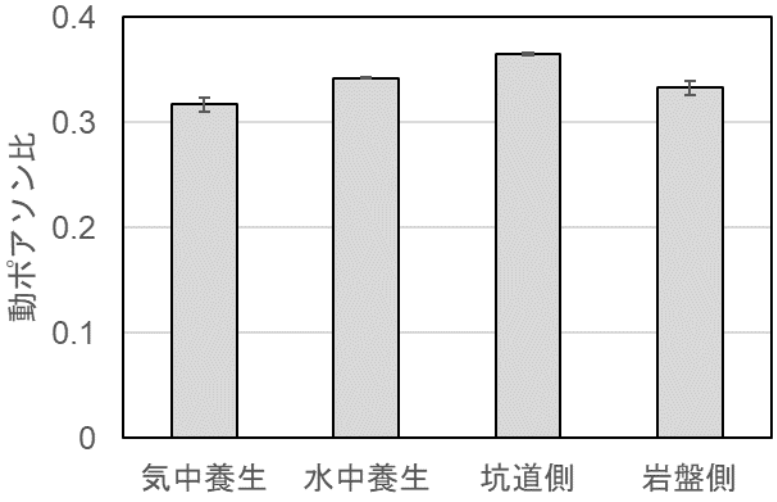
(c)　ポアソン比



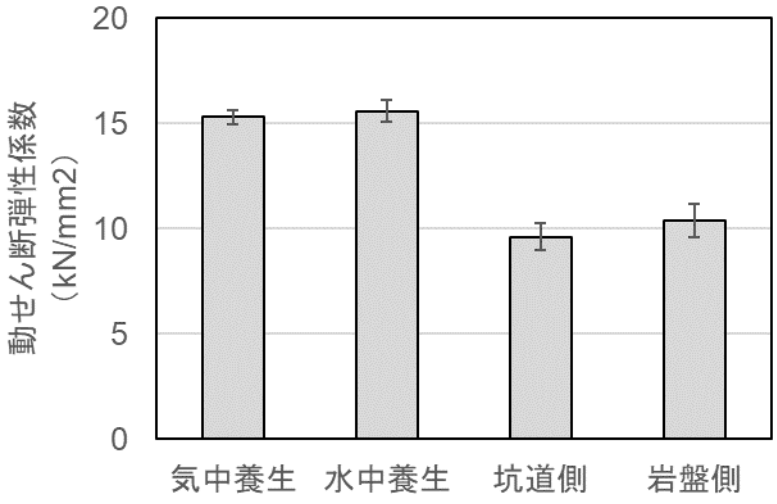
(d)　P 波速度



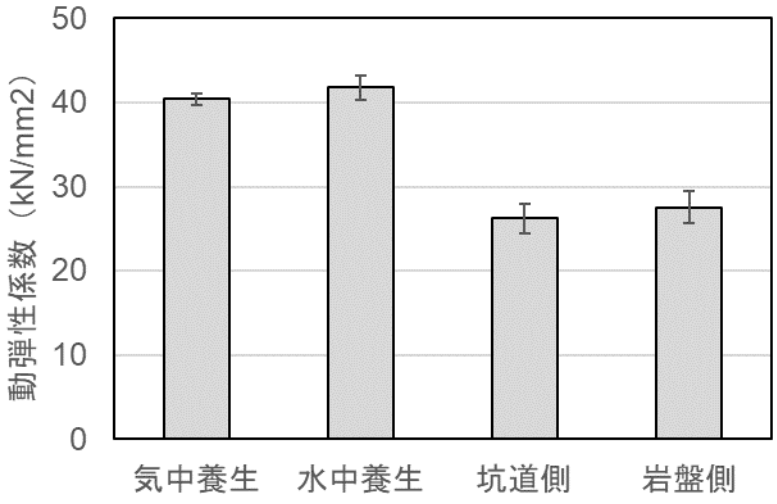
(e)　S 波速度



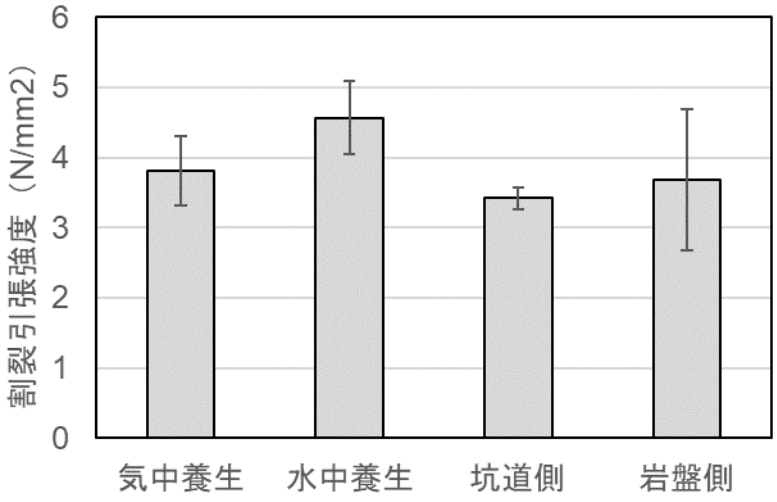
(f)　動ポアソン比



(g)　動せん断弾性係数



(h)　動弾性係数



(i)　割裂引張強度

図 2.2-56　強度特性に関する各試験・分析項目の結果

今回測定した定置供試体および吹付け支保工供試体の試験・分析結果を、過年度に実施した材齢 2 年目までの定置供試体の結果（原子力環境整備促進･資金管理センター・日本原子力研究開発機構, 2021; 2022; 2023b）と比較した（表 2.2-51）。比較にあたっては、多重比較手法の一つである Tukey-Kramer の HSD 検定を適用し、異なる 3 条件以上の試料間においてばらつきを考慮した平均値が統計的に有意に異なるかを判定した。定置供試体の一軸圧縮強度および静弾性係数は、初期値と比較して時間経過とともに値が有意に高くなり、水中養生の場合の方がその程度が大きい傾向が認められた。また、これらの項目に加えて P 波速度、S 波速度、動せん断弾性係数および動弾性係数では、吹付け支保工供試体に比べて定置供試体の値が有意に高かった。これらの結果は、水和反応の進行にともなう定置供試体の強度の経年的な増加、材齢の違いや骨材・空隙の分布のばらつきに起因すると考えられる定置供試体と吹付け支保工供試体の強度特性の違いを示唆しており、今年度のみの試験・分析結果から示唆される内容とも整合的である。

表 2.2-51　Tukey-KramerのHSD検定による試験・分析結果の比較

試料		平均値
3 年目水中養生	A	83.1
1 年目水中養生	A	79.0
1 年目気中養生	A	74.8
2 年目水中養生	A	74.2
3 年目気中養生	A　B	69.9
2 年目気中養生	B　C	61.9
定置初期値	B　C	53.9
吹付け岩盤側	C	47.8
吹付け坑道側	C	44.9

(a) 一軸圧縮強度

試料		平均値
3 年目水中養生	A	46.2
1 年目水中養生	A　B	41.8
2 年目水中養生	A　B　C	40.5
1 年目気中養生	B　C	37.4
2 年目気中養生	B　C	37.4
3 年目気中養生	B　C　D	37.2
定置初期値	C　D	35.8
吹付け坑道側	D	29.7
吹付け岩盤側	D	29.3

(b) 静弾性係数

試料		平均値
3 年目水中養生	A	0.301
2 年目気中養生	A　B	0.239
吹付け坑道側	A　B	0.235
2 年目水中養生	A　B	0.230
3 年目気中養生	A　B	0.227
1 年目水中養生	A　B	0.227
1 年目気中養生	A　B	0.220
定置初期値	B	0.212
吹付け岩盤側	A　B	0.200

(c) ポアソン比

試料		平均値
定置初期値	A	5.61
2 年目水中養生	B	5.19
3 年目水中養生	B　C	5.18
1 年目水中養生	B	5.18
1 年目気中養生	B　C	5.03
2 年目気中養生	C	4.99
3 年目気中養生	C	4.90
吹付け坑道側	D	4.47
吹付け岩盤側	D	4.30

(d) P 波速度

試料		平均値
2 年目水中養生	A	2.77
1 年目水中養生	A	2.70
定置初期値	B	2.58
2 年目気中養生	B	2.58
1 年目気中養生	B	2.55
3 年目水中養生	B	2.54
3 年目気中養生	B	2.53
吹付け岩盤側	C	2.15
吹付け坑道側	C	2.06

(e) S 波速度

試料		平均値
定置初期値	A	0.365
吹付け坑道側	A　B	0.365
3 年目水中養生	B　C	0.342
吹付け岩盤側	C　D	0.333
1 年目気中養生	C　D	0.326
2 年目気中養生	D	0.317
3 年目気中養生	C　D　E	0.317
1 年目水中養生	D　E	0.313
2 年目水中養生	E	0.300

(f) 動ポアソン比

試料		平均値
2 年目水中養生	A	18.4
1 年目水中養生	A B	17.5
定置初期値	C	15.9
2 年目気中養生	C	15.8
3 年目水中養生	B C	15.6
1 年目気中養生	C	15.4
3 年目気中養生	C	15.3
吹付け岩盤側	D	10.4
吹付け坑道側	D	9.61

(g) 動せん断弾性係数

試料		平均値
2 年目水中養生	A	47.9
1 年目水中養生	A B	45.9
定置初期値	B C	43.3
3 年目水中養生	B C	41.8
2 年目気中養生	C	41.6
1 年目気中養生	C	40.7
3 年目気中養生	C	40.4
吹付け岩盤側	D	27.5
吹付け坑道側	D	26.2

(h) 動弾性係数

試料		平均値
1 年目水中養生	A	5.43
2 年目水中養生	A B	4.93
3 年目水中養生	A B	4.57
2 年目気中養生	A B	4.47
1 年目気中養生	A B	4.36
3 年目気中養生	A B	3.81
定置初期値	B	3.70
吹付け岩盤側	A B	3.68
吹付け坑道側	B	3.42

(i) 割裂引張係数

アルファベットがつながっていない試料間では平均値が有意に異なることを意味する。

(b) 中性化深さ

定置供試体について、気中養生試料および水中養生試料の表面からの中性化深さ（噴霧したフェノールフタレインが赤く呈色しなかった領域）の平均値（±標準誤差）は、それぞれ 10.2±1.2 mm、0.5±0.04 mm であった（図 2.2.4-10）。気中養生試料では大気中の二酸化炭素との反応により、水中養生試料では地下水との接触によるセメント成分の溶脱により中性化が進行したと考えられ、後者は表面から 1 mm 未満とごく狭い領域であることが確認された。

吹付け支保工供試体の場合、坑道側と岩盤側の試料の中性化深さの平均値（±標準誤差）はそれぞれ 24.1±2.2 mm、5.7±0.1 mm であった（図 2.2.4-11）。坑道側は大気中の二酸化炭素との反応により、岩盤側では地下水との接触によるセメント成分の溶脱により中性化が進行したと考えられる。地下水と接触している場合よりも大気と接触している場合に中性化深さが大きい点は、定置供試体の結果と整合的である。

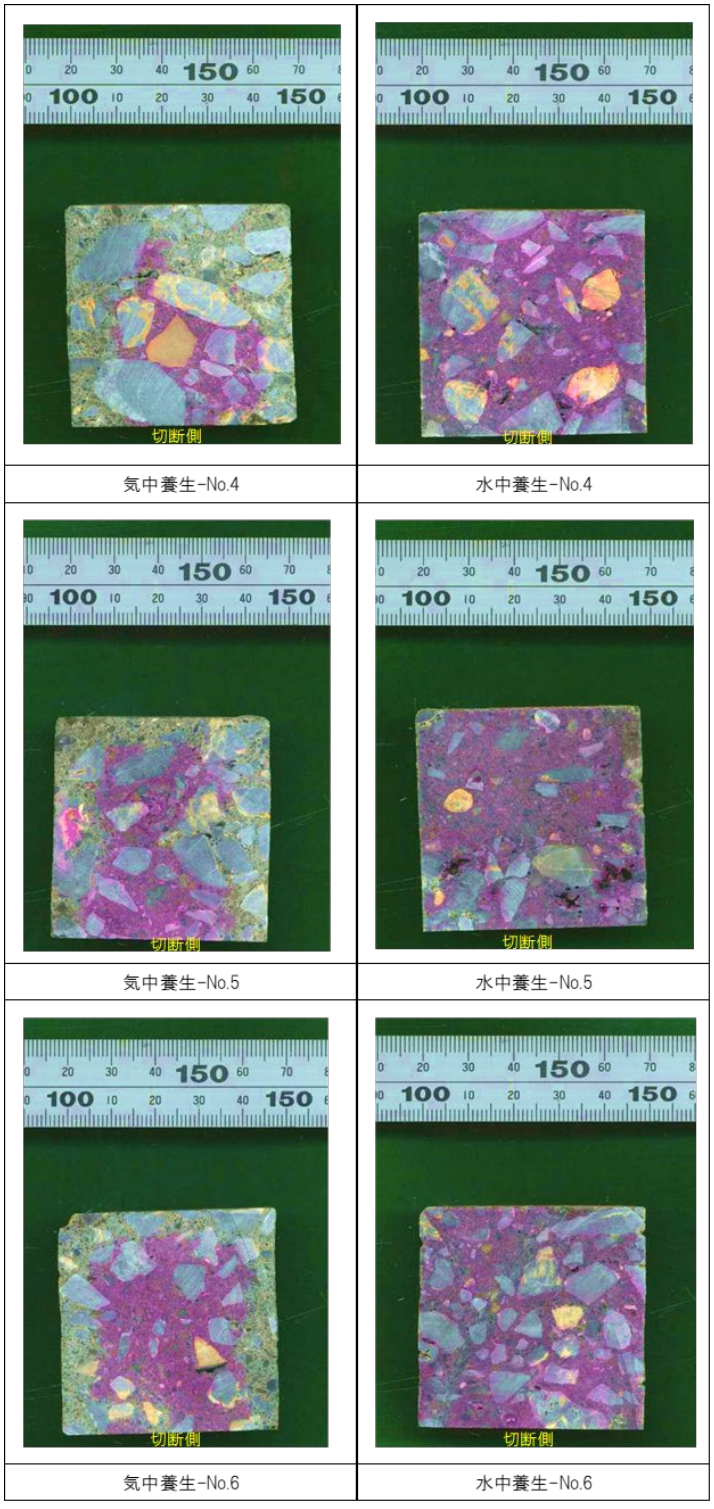
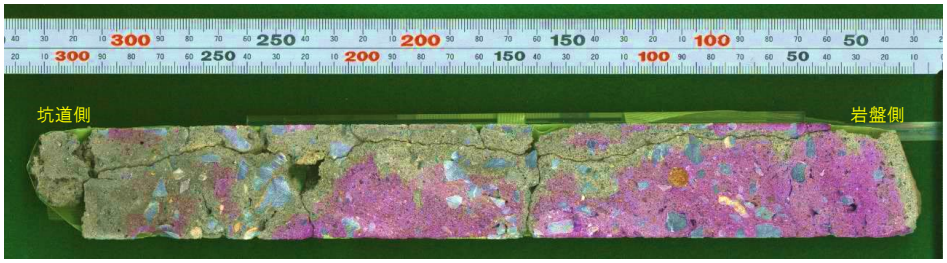


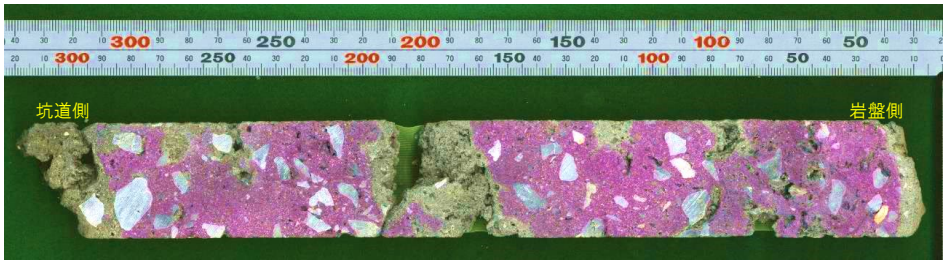
図 2.2-57　定置供試体における中性化深さ測定結果

呈色が確認しやすいように画像の色調を調整した結果を示している。

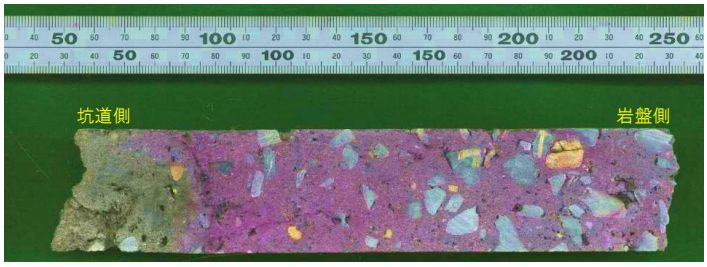
施設採取供試体-No.2



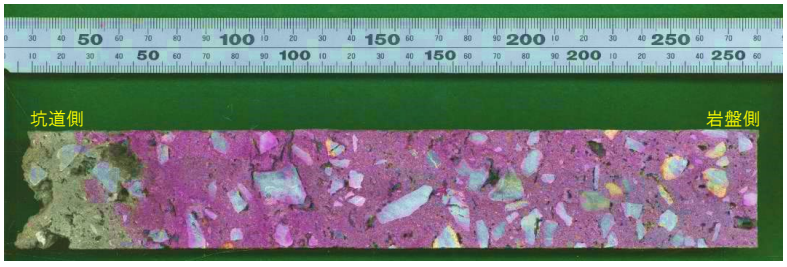
施設採取供試体-No.6



施設採取供試体-No.12



施設採取供試体-No.18



施設採取供試体-No.21

図 2.2-58　吹付け支保工供試体における中性化深さ測定結果

呈色が確認しやすいように画像の色調を調整した結果を示している。

No.18 と 21 の「岩盤」と記載された部分は切断部であり、実際の岩盤との接触面ではない。

コンクリートの中性化深さの予測式は式(2.2-5)の通りである。

$X = A \cdot t^{1/2}$ 式(2.2-5)

ここで、X は中性化深さ（mm）、A は中性化速度係数（mm/year$^{1/2}$）、t は経過時間（year）である。同式を用いて、今回測定した材齢約 3 年の定置供試体ならびに材齢約 10 年の吹付け支保工供試体の中性化速度係数を算出し、昨年度の実施結果（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, 2023b）と比較して表 2.2-52 に示した。中性化深さの測定に起因する誤差を考慮すると、今回の測定結果から算出された定置供試体の 5.9 mm/year$^{1/2}$ という結果は、昨年度の定置供試体や吹付け支保工供試体の坑道側の試料における結果と有意な差があるとは言えなかった。また、普通ポルトランドセメント（OPC）を用いた実験データにもとづく中性化速度係数の回帰式は式(2.2-6)のように表される（土木学会, 2022）。

$\alpha_k = -3.57 + 9.0 \times W/B$ 式(2.2-6)

ここで、α_k は中性化速度係数の特性値（mm/year$^{1/2}$）、W は単位体積当たりの水の質量、B は単位体積当たりの有効結合材の質量であり、B は Cp + k·Ad で表せる。Cp は単位体積当たりのポルトランドセメントの質量、Cp は単位体積当たりのポルトランドセメントの質量、Ad は単位体積当たりの混和材の質量、k は混和材の種類により定まる定数であり、フライアッシュの場合は 0 である。定置供試体ならびに幌延の地下施設で施工された HFSC 吹付けコンクリートの単位水量および単位結合材料をもとに α_k を求めると、4.3 mm/year$^{1/2}$ と算出され、大気と接触していた HFSC 供試体の中性化速度係数とおおむね同程度であった。したがって、フライアッシュを用いた OPC などと比較して HFSC における中性化の進行速度が大きく変化するということはなく、地層処分事業への適用を主な目的として開発された HFSC においても、既存の評価式により中性化速度がおおむね予測可能であることが示唆される。

一方、地下水と接触していた試料は、大気と接触していた試料と比べて中性化速度係数が 1 桁程度小さかった。このことは、地下水との接触によるセメント成分の溶脱にともなう中性化については既存の評価式による予測が困難であることを示唆している。また、定置供試体の水中養生試料と比べて吹付け支保工の岩盤側試料で中性化速度係数が有意に大きかった。このことは、後述する空隙率分布の違いや供試体表面での鉱物の形成と関与している可能性がある。

表 2.2-52　中性化速度係数の比較結果

	大気と接触			地下水と接触		
試料	定置 気中養生	定置 気中養生	支保工 坑道側	定置 水中養生	定置 水中養生	支保工 岩盤側
材齢（年）	2	3	10	2	3	10
中性化速度係数 （mm/year$^{1/2}$）	4.0±0.2	5.9±1.2	7.6±0.7	0.5±0.04	0.3±0.02	1.8±0.05

これ以降に示す試験・分析では、定置供試体のうち、中性化が生じていることが確認された領域を変質部、中性化が確認されなかった領域を健全部と定義し、変質部の試料は中性化が生じている試料表面領域を含むように採取した。また吹付け支保工供試体についても、坑道側と岩盤側については、中性化が生じていることが確認された領域から試料を採取した。

(c)　水分量

水分量（含水率）の測定結果を図 2.2.4-12 に示す。定置供試体は、気中養生試料では健全部、水中養生試料では変質部の方がより高い含水率を示した。それぞれの試料の定置環境における水分状態を反映したものと考えられる。吹付け支保工供試体では、試料により場所ごとの含水率の大小関係が異なっていた。坑道側および岩盤側の試料では、後述するように中性化にともない空隙量が増加し、そのため含水率の測定結果にも影響を及ぼした可能性が考えられる。また、吹付け支保工供試体の含水率はいずれも、気中養生試料と水中養生試料の各変質部の値の間にあった。実際の坑道内の吹付け支保工において水分状態が物性等に与える影響を評価する場合には、定置供試体の 2 種類の養生状態を両端成分として評価できる可能性があることが示唆される。

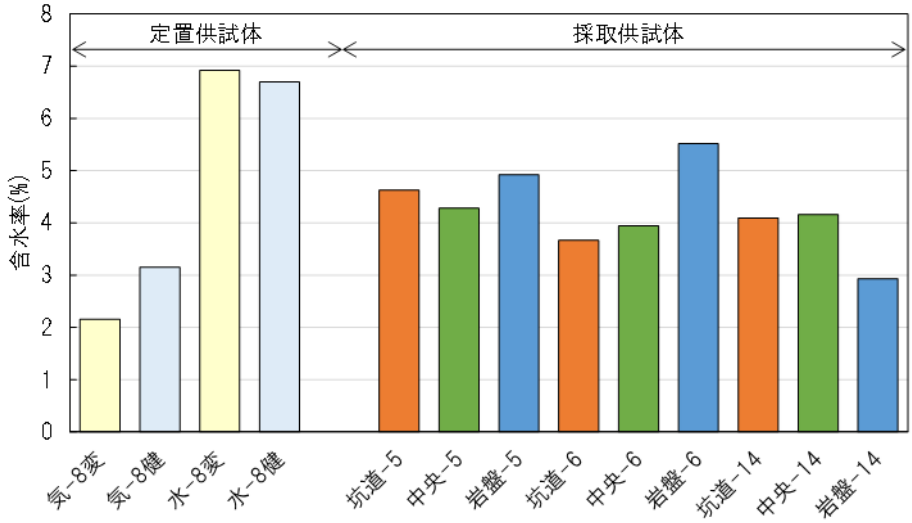
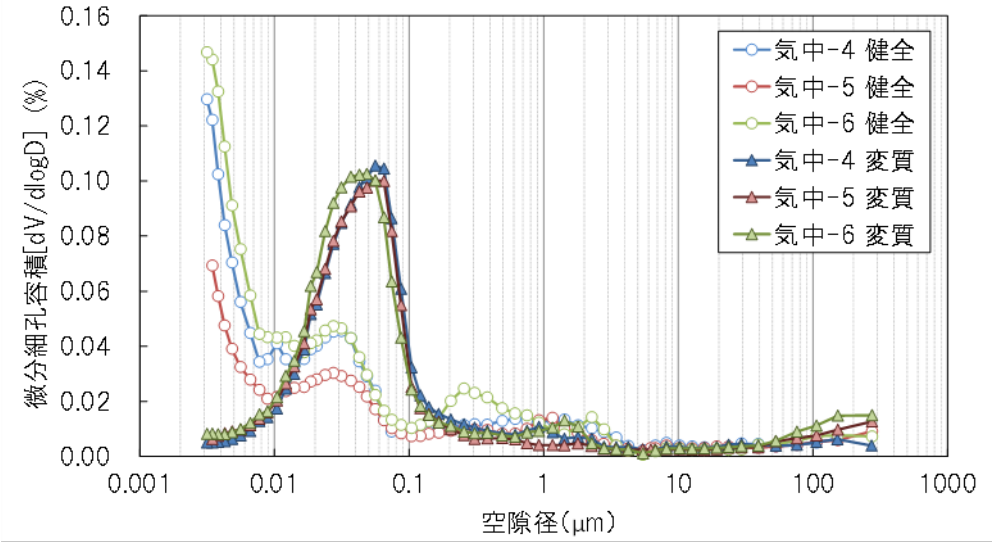


図 2.2-59　水分量の測定結果

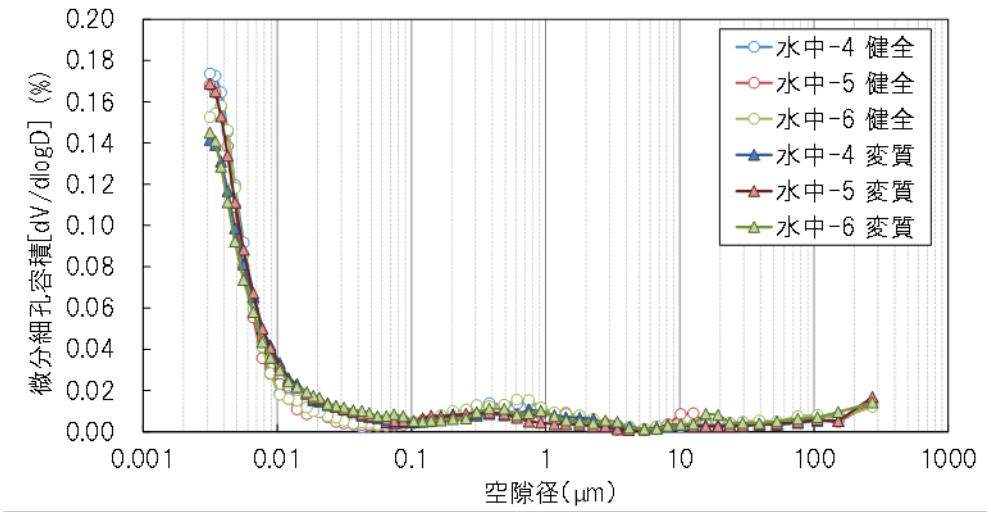
(d)　空隙率

定置供試体の空隙率の平均値（±標準誤差）は、気中養生試料の変質部で 10.2±0.4%、健全部で 8.9±1.3%であり、水中養生試料の変質部で 7.8±0.1%、健全部で 7.7±0.2%であった。気中養生試料の平均値は健全部よりも変質部で大きいものの、誤差を考慮すると、気中・水中養生試料ともに変質部と健全部とで空隙率の値には有意な差があるとは言えなかった。

図 2.2.4-13 に示す空隙率の微分細孔容積分布を比較すると、気中養生試料の健全部では 0.003～0.01 μm の空隙が多かったのに対し、変質部ではこのサイズの空隙が減少し、0.01～0.1 μm の空隙が増加していた。また、水中養生試料では変質部と健全部の空隙分布に差はなく、いずれも気中養生試料の健全部と同様に、0.003～0.01 μm の空隙が最も多かった。気中養生試料の変質部は中性化が進んでおり、数 nm サイズの微細な空隙を有する C-S-H が分解したことによってサイズの大きな空隙の割合が増加したと考えられる。また、気中養生試料の健全部においても 0.01～0.1 μm の空隙のピークが確認されたが、水中養生試料ではそのようなピークは認められなかった。これは、水中養生試料でセメントの水和反応が進行し、より緻密な構造となっていることによると考えられる。水中養生試料では中性化により表面でセメント成分が溶脱していることが示唆されるが、その領域がごくわずかである（図 2.2.4-10）ことから、空隙率分布には影響を及ぼさなかった（または分析で検出されなかった）可能性が考えられる。また、水和反応の進行による水中養生試料の構造の緻密化は、気中養生試料に比べて水中養生試料で強度が経年的に増加しているという結果（表 2.2-51）とも整合していると考えられる。



(a) 気中養生試料



(b) 水中養生試料

図 2.2-60　定置供試体における空隙率の微分細孔容積分布

吹付け支保工供試体の空隙率の平均値（±標準誤差）は、坑道側、中央部、岩盤側の試料で各15.6±1.1%、12.9±0.6%、17.9±1.0%であった（岩盤側の試料 3 点のうち 1 点は、試料中央部の亀裂を中心とする中性化領域内から採取）。中央部と岩盤部では有意な差が認められたが、中央部と坑道側では統計的な有意差があるとは言えなかった。

吹付け支保工供試体の一試料に対する空隙率の微分細孔容積分布の結果を図 2.2.4-14 に示す。中央部では、定置供試体の水中養生試料と同様に 0.003～0.01 μm の空隙の割合が高かったのに対し、岩盤側ではこのサイズの空隙の割合がやや減少して 0.01～0.1 μm の空隙の割合が増加していた。また、坑道側ではさらに大きい 0.3 μm 程度までのサイズの空隙の割合が増加し、ピークも全体的に空隙径の大きい側に移行していた。中央部では中性化の影響がないことが確認されており、水和反応の進行により構造が緻密化していた一方で、坑道側では大気中の二酸化炭素との反応による中性化により C-S-H が分解し、微細な空隙の減少およびより大きなサイズの空隙の

増加が生じたと考えられる。また、岩盤側でも地下水との接触によるセメント成分の溶脱により同様に中性化が進行し、大きなサイズの空隙が増加する一方で、地下水による水和反応の進行により 0.001～0.01 μm の微細な空隙も完全には消失せずに存在していたと考えられる。

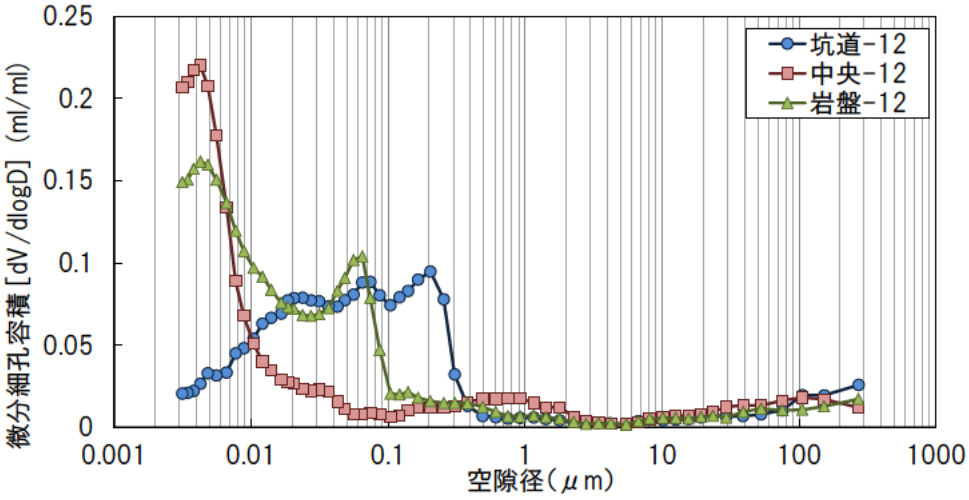


図 2.2-61　吹付け支保工供試体における空隙率の微分細孔容積分布の一例

(e)　透水性

予備検討の結果から、定置供試体の気中養生試料ならびに坑道から採取した吹付け支保工供試体の坑道側の試料はアウトプット法、定置供試体の水中養生試料ならびに吹付け支保工供試体の岩盤側の試料はインプット法での透水試験を実施することとした。アウトプット法は、試料の実際の通水量から透水係数を算出する方法であり、インプット法は、一定期間の注水で通水が認められない試料に対して水の浸透深さを測定し､仮定にもとづいて透水係数を算出する方法である。

○アウトプット法

アウトプット法による透水試験（水圧 0.5 MPa で 1 週間注水）の結果を表 2.2-53 に示す。定置供試体の気中養生試料では、変質部側の面から注水した場合と健全部側の面から注水した場合とで透水係数が同オーダーであり、注水面の影響はほとんどなかったと考えられる。吹付け支保工供試体の坑道側試料の透水係数は、定置供試体に比べて 1 桁以上小さかった。空隙率は気中養生試料よりも吹付け支保工供試体の方が全体的に高かったため（「(d) 空隙率」参照）、空隙率の影響は小さいと考えられ、骨材分布等の違いの影響を受けた可能性が考えられる。

表 2.2-53　アウトプット法での透水試験結果

	定置供試体		吹付け支保工供試体		
試料	気中養生-7 変質部から通水	気中養生-7 健全部から通水	No.7 坑道側	No.10 坑道側	No.23 坑道側
透水係数（m/s）	2.9×10^{-12}	1.8×10^{-12}		2.9×10^{-13}	

○インプット法

2 週間の注水に対する試料中の浸透深さの平均値を算出し、式(2.2-7)により透水係数に変換した（笠井, 1998）。

$$K = \rho \times (q/s) \times (D_m/(P \times A)) \quad \text{式(2.2-7)}$$

ここで、K は透水係数（cm/s）、ρ は水の単位質量（0.001 kg/cm³）、q は流入水量（cm³）、s は試験期間（s）、D_m は試料に対する水の浸透深さ（cm）、P は圧力（kgf/cm²）、A は断面積（cm²）である。この方法では定常状態を仮定して透水係数を算出しているため、実際の値より大きくなる傾向にあることに留意が必要である。

また、同じく水の浸透深さから式(2.2-8)により試料の拡散係数を算出し（笠井, 1998）、試料の物性値にもとづいて、式(2.2-9)により透水係数に変換した（村田, 2002）。

$$\beta_i{}^2 = \alpha \times \left({D_m}^2/(4 \times t \times \xi^2)\right) \quad \text{式(2.2-8)}$$

$$\beta_i{}^2 = kK/\rho \quad \text{式(2.2-9)}$$

ここで、βi は拡散係数（cm²/s）、t は水圧を加えた時間（s）、α は水圧を加えた時間に関する係数（本条件の場合、$t^{3/7}$）、ξ は水圧の大きさに関する係数（本条件の場合、0.724）である。また、κ は試料の平均体積弾性率（kgf/cm²）であり、式(2.2-10)により試料の物性値から算出できる。

$$\frac{1}{k} = \frac{v}{k_c} + \frac{(1-v)}{k_w}, \quad k_c = \frac{E_c}{3(1-2\gamma)} \quad \text{式(2.2-10)}$$

ここで、kc はコンクリートの体積弾性係数（kN/mm²）、kw は水の体積弾性係数である 2.45（kN/mm²）、v はコンクリートの体積比（「1－空隙量」から算出し、空隙量は定置供試体で 0.0771、吹付け支保工供試体で 0.1792）、Ec はコンクリートの静弾性係数（kN/mm²）であり定置供試体で 46.2、吹付け支保工供試体で 29.3、γ はポアソン比であり定置供試体で 0.22、吹付け支保工供試体で 0.20 とした。

インプット法（水圧 0.5 MPa で 2 週間注水）により算出した透水係数の結果を表 2.2-54 に示す。定置供試体の水中養生試料では、気中養生試料と同様に、変質部と健全部の注水面の違いによる影響は認められなかった。また、吹付け支保工供試体では平均浸透深さが試料間で大きく異なり、算出される拡散係数や透水係数にもおよそ 1 オーダーのばらつきが認められた。これは、吹付け供試体での骨材の分布状況や、吹付け時に生じる大きな空隙などの施工状況の違いに起因するものと考えられる。上述のように、浸透深さから透水係数を算出する方法は定常状態を仮定したものであり、浸透面からの距離によらず圧力が一定と仮定されている。一方、拡散係数から算出する方法は、時間や浸透面からの深さに応じて流速が変化することを考慮しているため、後者の方が透水係数の値が 1 桁程度低くなる。実際の供試体への通水状況や、アウトプット法の結果との比較からすると、拡散係数から透水係数を算出する方法の方がより実際の状況に即した値が得られると考えられる。

インプット法は試料への通水量を実測する方法ではないため、算出される透水係数も参考値と見なす必要がある。しかしながら、アウトプット法の試料は 1 週間以内に通水が認められたのに対し、インプット法では 2 週間の注水でも通水が認められなかったため、インプット法に供した試料の方が定性的に低透水性であることは明らかであり、透水係数の結果とも整合的である。

表 2.2-54　インプット法での透水試験結果

	定置供試体		吹付け支保工供試体		
試料	水中養生-7 変質部から通水	水中養生-7 健全部から通水	No.7 岩盤側	No.10 岩盤側	No.23 岩盤側
平均浸透深さ（mm）	13.33	19.12	13.28	26.28	43.25
流入水量（cm^3）	2.44	3.37	2.44	4.35	8.39
試料直径（mm）	49.7	49.8	43.4	43.2	43.4
拡散係数（m^2/s）	1.8×10^{-8}	3.7×10^{-8}	1.8×10^{-8}	7.0×10^{-8}	1.9×10^{-7}
透水係数（浸透深さから算出）（m/s）	2.7×10^{-13}	5.3×10^{-13}	3.5×10^{-13}	1.3×10^{-12}	4.0×10^{-12}
透水係数（拡散係数から算出）（m/s）	1.2×10^{-14}	2.4×10^{-14}	2.2×10^{-14}	8.5×10^{-14}	2.3×10^{-13}

○地盤工学会基準の透水試験法

低透水性の試料に適用される地盤工学会基準の透水試験法（JGS 0312-2018；地盤工学会, 2018）を、定置供試体の気中養生試料ならびに吹付け支保工供試体の坑道側・岩盤側の試料に適用した。真空脱気により 1 か月間飽和させた試料に、給水・排水ビュレットの水位を変動させながら 0.1 MPa の差圧をかけて注水した。試料への通水が確認されるまでは流出側の水位が一定と仮定して式(2.2-11)により、通水後は式(2.2-12)により、透水係数を算出した。

$$k_T = \ln 10 \frac{a_{in} L}{A(t_2 - t_1)} \log_{10} \frac{h_1}{h_2} \times \frac{1}{1000} \qquad \text{式(2.2-11)}$$

$$k_T = \ln 10 \frac{(a_{in} \times a_{out}) L}{(a_{in} + a_{out}) A(t_2 - t_1)} \log_{10} \frac{h_1}{h_2} \times \frac{1}{1000} \qquad \text{式(2.2-12)}$$

ここで、k_T は水温 T（℃）における透水係数（m/s）、a_{in} と a_{out} はそれぞれ流入側および流出側のビュレットの断面積（mm^2）、L は試料の長さ（mm）、A は試料の断面積（mm^2）、t_1 および t_2 は水位差の測定時刻、h_i は時刻 t_i におけるビュレット間の水位差（mm）である。さらに、得られた k_T を式(2.2-13)により水温 15℃での透水係数 k_{15}（m/s）に換算した。

$$k_{15} = k_T \times \frac{\eta_T}{\eta_{15}} \qquad \text{式(2.2-13)}$$

ここで、η_T および η_{15} はそれぞれ温度 T℃、15℃における粘性係数である。

以上の方法により求めた水温 15℃での透水係数を表 2.2-55 に示す。定置供試体の気中養生試料の測定結果は 4.3×10^{-12} m/s であり、同条件の試料をアウトプット法で測定した場合（$1.8\sim2.9\times10^{-12}$ m/s；表 2.2-53）と同オーダーの結果が得られている。一方、吹付け支保工供試体の場合には坑道側で 2 オーダー、岩盤側で 3 オーダーのばらつきがあり、インプット法・アウトプット法の結果と比べてもばらつきが大きかった。ただし、岩盤側のうちの 1 試料（No.11 岩盤側）では、試料の準備段階で確認されなかったクラックを通じて通水が生じたため試験を中断し、通水

が確認された時点の測定値から透水係数を算出した。

インプット法およびアウトプット法の結果からは、HFSC 試料の透水係数について気中養生試料＞吹付け支保工坑道側≒吹付け支保工岩盤側＞水中養生試料の傾向が示唆された。一方で、地盤工学会の方法による吹付け支保工供試体の測定結果には大きなばらつきがあった。これらの違いが、試験方法の違いによるものか、骨材分布、施工状況、亀裂分布等の試料状態の違いによるものか、今後もデータを蓄積して検討する必要があるが、いずれにしても、最大で 10 年程度の変質を被った HFSC 試料においても 10^{-10} m/s 以下の低透水性が維持されているといえる。

表 2.2-55　地盤工学会の方法での透水試験結果

	定置供試体	吹付け支保工供試体 坑道側			吹付け支保工供試体 岩盤側		
試料	気中養生-8 変質部から 通水	No.4 坑道側 1)	No.11 坑道側 1)	No.20 坑道側	No.4 岩盤側 2)	No.11 岩盤側 1)	No.20 岩盤側
透水係数 （m/s）	4.3×10^{-12}	3.4×10^{-12}	2.2×10^{-13}	3.3×10^{-11}	8.9×10^{-10}	1.9×10^{-13}	2.3×10^{-12}

1) 試験期間内に通水が認められなかったため、流出側の水位が一定と仮定して算出。
2) 目視では確認されなかったクラックを通じて通水が生じた。通水が確認された時点の測定値から算出。

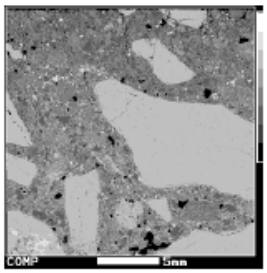
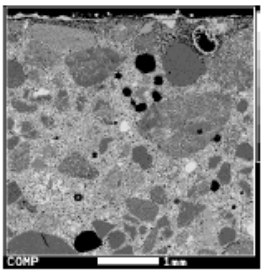
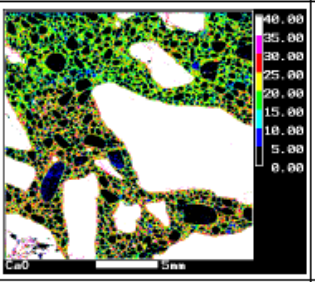
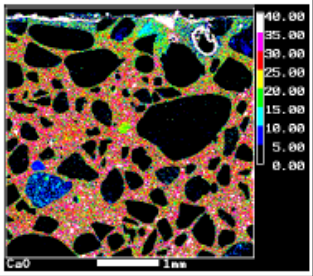
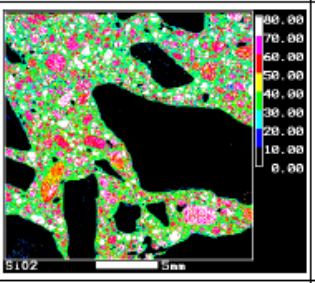
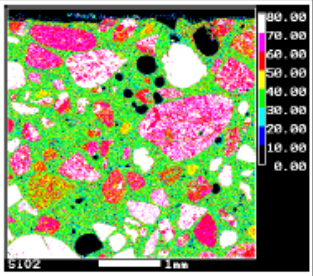
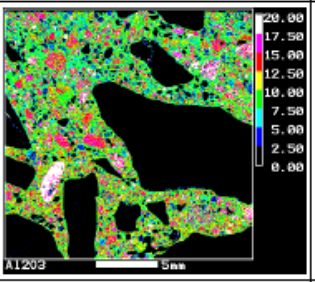
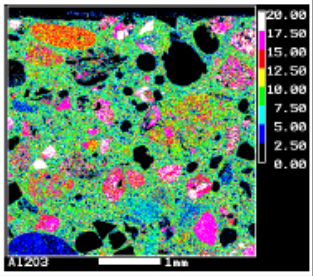
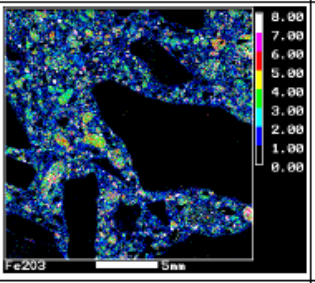
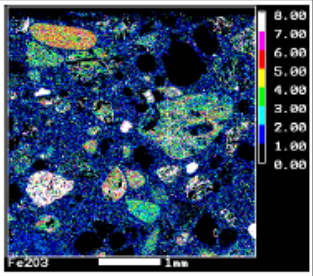
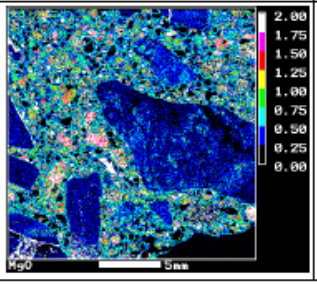
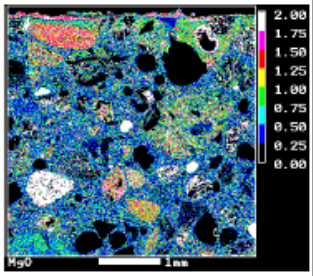
(f) 元素濃度分布

○EPMA

定置供試体の EPMA 観察結果を図 2.2.4-15 に示す。なお、図の上側が試料表面であり、各元素濃度は酸化物（mass%）で示している。気中養生試料では、中性化領域に相当する表面から約 9 mm の範囲において、CaO 濃度と SO_3 濃度の低下および CO_2 濃度の上昇が認められた。大気中の二酸化炭素との反応により、C-S-H などの Ca を含む水和物ならびにエトリンガイトなどのカルシウム硫酸塩水和物が溶解し、炭酸カルシウムに変化していると考えられる。これにより、CO_2 濃度は上昇し、発生した Ca や S（SO_4）は健全部に移動したことにより濃度が低下、または空隙構造が粗な状態となったこと（図 2.2.4-13）により見かけ上の濃度低下が生じたと考えられる。また、CO_2 濃度の上昇は、EPMA 観察のために使用された樹脂の炭素成分に起因する可能性もあり、空隙構造が粗となっている変質部においてその影響がより強く表れた可能性もある。

水中養生試料では、表面から約 1 mm の範囲で CaO・SO_3 濃度の低下が、約 0.5 mm の範囲で MgO・Na_2O・K_2O・CO_2 濃度の上昇が認められた。また、試料表面に CaO・MgO 濃度の高い厚さ数 μm 程度の領域が新たに生じていた。さらに、気中養生試料ではほとんど認められなかった Cl が試料全体で検出された。MgO・Na_2O・K_2O・CO_2 および Cl 濃度の上昇は、これら成分のイオンを高濃度に含む地下水の浸潤によるものと考えられる。CaO および SO_3 については、地下水の浸潤により C-S-H やエトリンガイトなどが溶解し、コンクリート（高濃度）と間隙内や試料外部の地下水（低濃度）との濃度勾配によって Ca および S が地下水に移行・流出したと考えられる。CO_2 の濃度分布が樹脂成分の影響を受けていたため、試料表面の CO_2 の分布は正確には把握できなかったが、試料表面で認められた Ca・Mg の高濃度領域は、試料内から溶脱してきた Ca と地下水中の Mg・炭酸イオンとによる炭酸カルシウム（および／またはマグネシウム）の形成によるものと考えられる。このことは、炭酸水素ナトリウム溶液に対するセメントペースト供試体の室内浸漬試験の結果（蔵重・廣永, 2007）や、幌延の地下施設における HFSC と岩石の接触

界面で観測されている、セメントから岩盤への Ca の移行ならびに界面近傍でのカルサイトの沈殿（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2023）とも整合的な現象である。

	No.5-気中養生	No.5-水中養生
反射電子像		
CaO		
SiO_2		
Al_2O_3		
Fe_2O_3		
MgO		

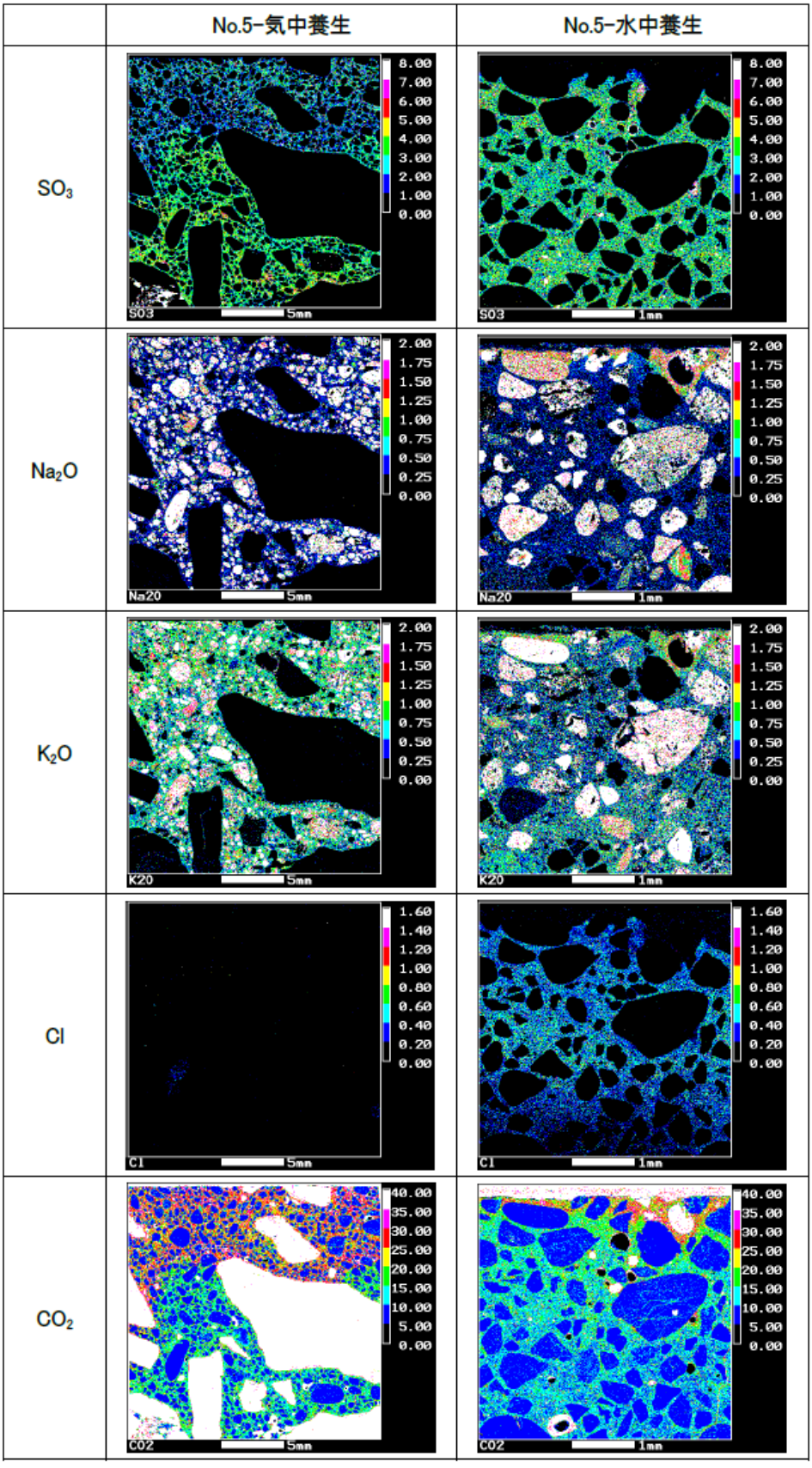
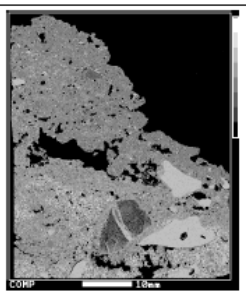
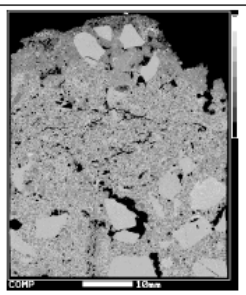
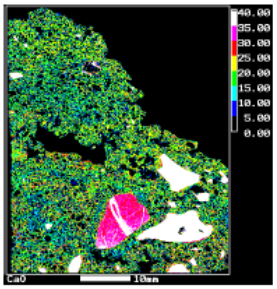
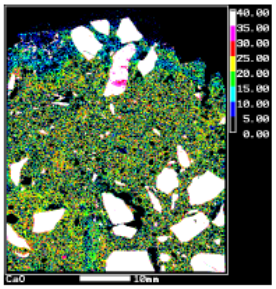
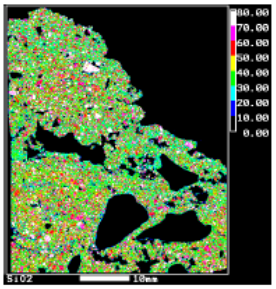
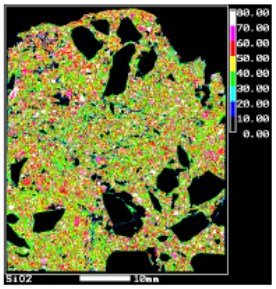
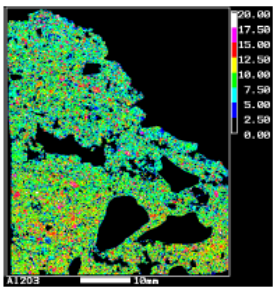
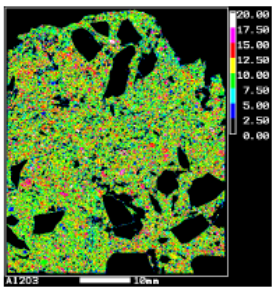
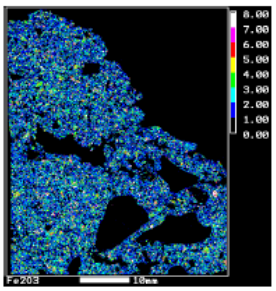
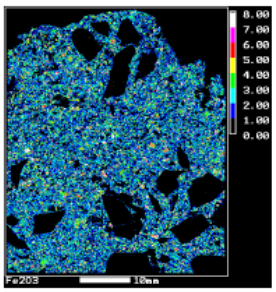
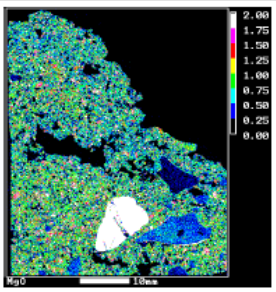
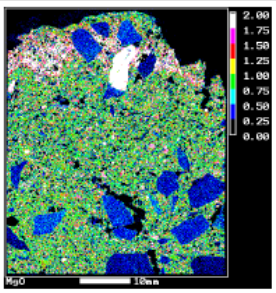


図 2.2-62　定置供試体のEPMA観察結果

吹付け支保工供試体の EPMA 観察結果の一例を図 2.2.4-16 に示す。なお、坑道側の試料は坑道表面、岩盤側の試料は岩盤との接触面が図の上側であり、各元素濃度は酸化物（mass%）で示している。坑道側の試料について、中性化領域に相当する表面から約 20 mm の範囲では CO_2 濃度の上昇と SO_3 濃度の低下が認められた。一方、定置供試体の気中養生試料で確認された CaO 濃度の低下は明確には認められなかった。CaO の濃度低下が顕著ではなかった理由は不明であるが、気中養生試料と同様に、大気中の二酸化炭素との反応により C-S-H やエトリンガイトなどの水和物が溶解し、炭酸カルシウムが形成されたと考えられる。また、Na_2O は試料全体にわたって、Cl は表面から約 20 mm より深い領域において、その濃度が上昇していた。岩盤から供給された高塩濃度の地下水が亀裂を通じて坑道近くまで浸潤した可能性、または地下水中の Na・Cl を固定した岩盤側のセメント成分が中性化により溶解し、Na・Cl が濃度勾配により坑道側へ移動した可能性が考えられる。

岩盤側の試料について、中性化領域に相当する表面から約 5 mm の範囲では $CaO・SO_3$ 濃度の低下ならびに $MgO・Na_2O・CO_2$ 濃度の上昇が認められた。定置供試体の水中養生試料と同様に、これらの結果は、地下水の浸潤によるイオン成分濃度の上昇ならびに C-S-H やエトリンガイトなどの溶解と Ca および S の移行・流出で説明できる。ただし、試料表面に Ca や Mg の高濃度領域が認められなかったことは、水中養生試料の結果と異なる。定置供試体は吹付け支保工供試体よりも空隙率が低く（「④空隙率」参照）、供試体への地下水の浸潤が遅かったことに加え、地下水と反応して溶解した Ca は濃度勾配により拡散で移行し、地下水中の炭酸イオンと速やかに反応して試料表面で炭酸塩鉱物を形成したと考えられる。以上のメカニズムにより、定置供試体の水中養生試料ではより深部までの地下水の浸潤が抑制された可能性がある。一方、吹付け供試体の場合は骨材分布や施工状況などの不均質性に起因すると考えられる高い空隙率のため、地下水がより深部まで浸潤しやすかったと考えられる。また、コンクリートと岩盤とが密着した形で採取された試料では界面近傍で炭酸塩鉱物が沈殿していたが（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2023）、今回分析対象とした試料はいずれも採取時にコンクリートと岩盤が離れており、岩盤近傍のコンクリートは濡れていたものの（図 2.2.4-17）、接触する地下水の量は明らかに水中養生試料より小さかった。水分量の測定結果でも、吹付け支保工供試体の岩盤側の試料における水分量は定置供試体の水中養生試料よりも小さかった（図 2.2.4-12）。したがって、吹付け支保工供試体の岩盤側では、地下水から供給される炭酸イオンの量が小さかったこと、ならびにコンクリートと岩盤の間の空隙を通じて Ca が地下水とともに流出したことなどにより、試料表面に炭酸塩鉱物の形成が生じなかった可能性がある。

以上の推定に基づくと、コンクリートと岩盤との接触面における炭酸塩鉱物の生成については、コンクリートの空隙率分布、コンクリートと岩盤との密着度合い、地下水の化学組成（特に炭酸イオン濃度）ならびに地下水の供給量やその変化が、重要なパラメータとして抽出される。コンクリート（セメント）と処分場の構成材料（岩盤、ベントナイト等）との相互作用においては、炭酸塩鉱物などの二次鉱物の生成による透水性の低下が重要な現象と認識されており（たとえば、電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005；Gaucher and Blanc, 2006；原子力発電環境整備機構, 2021）、本研究での水中養生試料の結果から、コンクリート単体においても同様の現象が生じていることが示唆される（表 2.2-54、図 2.2.4-15）。したがって、本研究の結果は、セメントと各構成材料間での長期的な物性変化に関する評価に必要な現象理解ならびにパラメータ抽出にも資するものと考えられる。

	No.12-坑道側	No.12-岩盤側
反射 電子像		
CaO		
SiO_2		
Al_2O_3		
Fe_2O_3		
MgO		

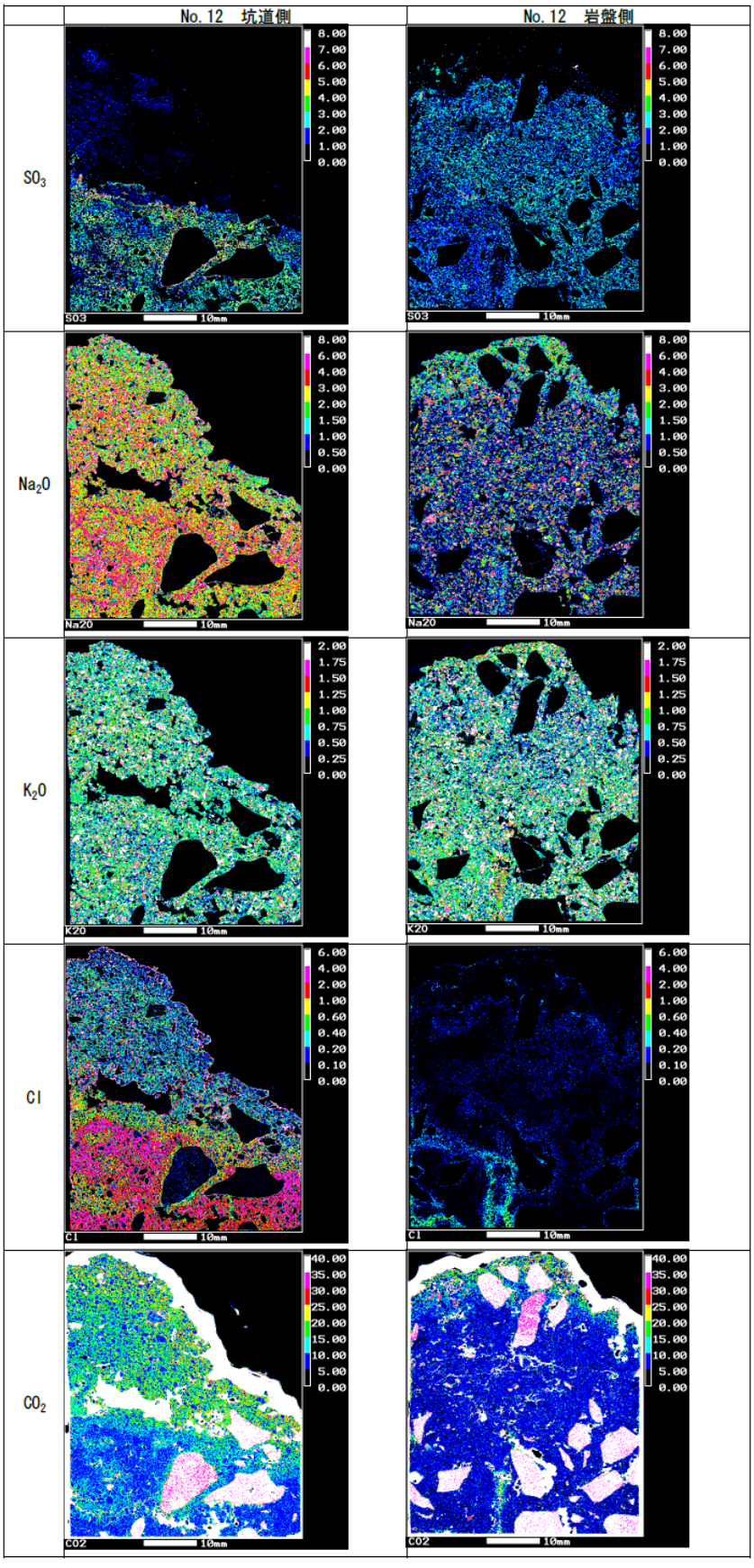


図 2.2-63　吹付け支保工供試体のEPMA観察結果の一例

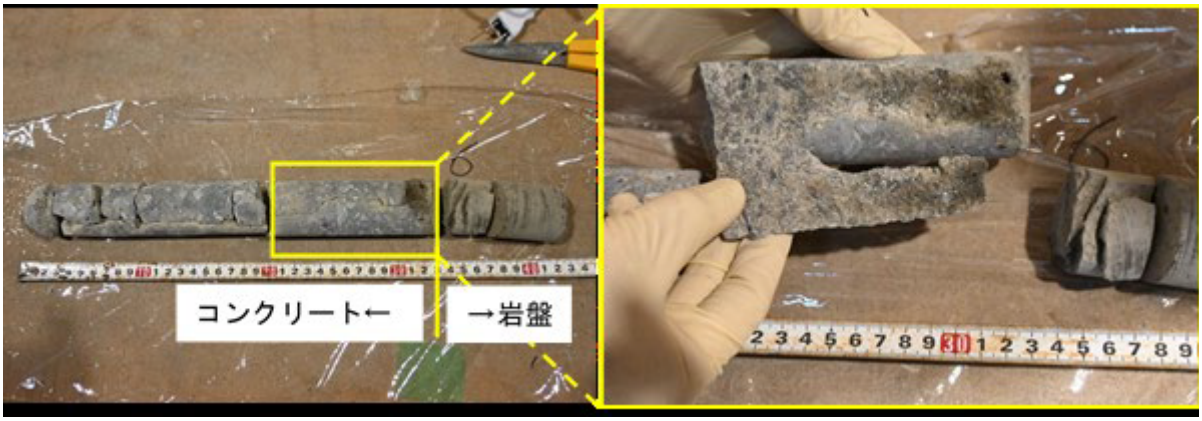
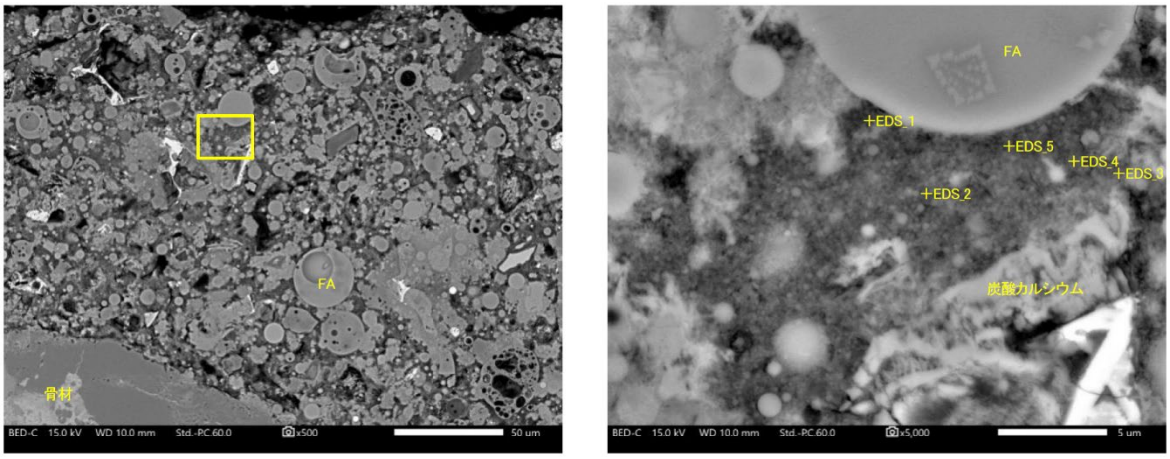


図 2.2-64　吹付け支保工供試体の岩盤側で認められた試料の濡れ

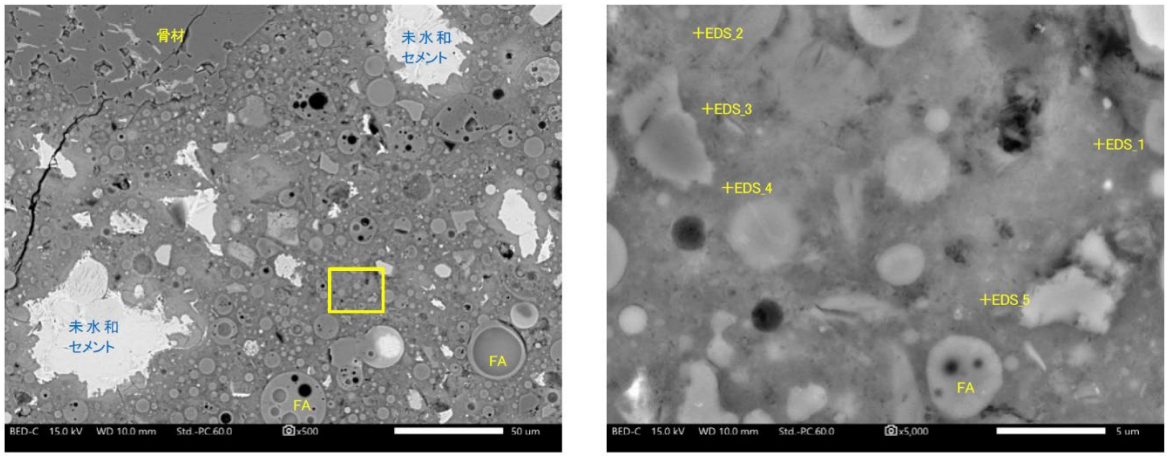
○SEM/EDS

定置供試体における SEM での観察結果の一例を図 2.2.4-18 に、SEM 観察から C-S-H と推定された領域に対して実施した EDS 分析の結果を表 2.2-56 にそれぞれ示す。定置供試体の気中養生試料と水中養生試料とで、変質部および健全部の SEM 画像はそれぞれ類似していた。EDS 分析の結果、変質部同士を比較すると気中養生試料の方が CaO 濃度および CaO と SiO_2 の濃度比（C/S 比）が有意に低かった。

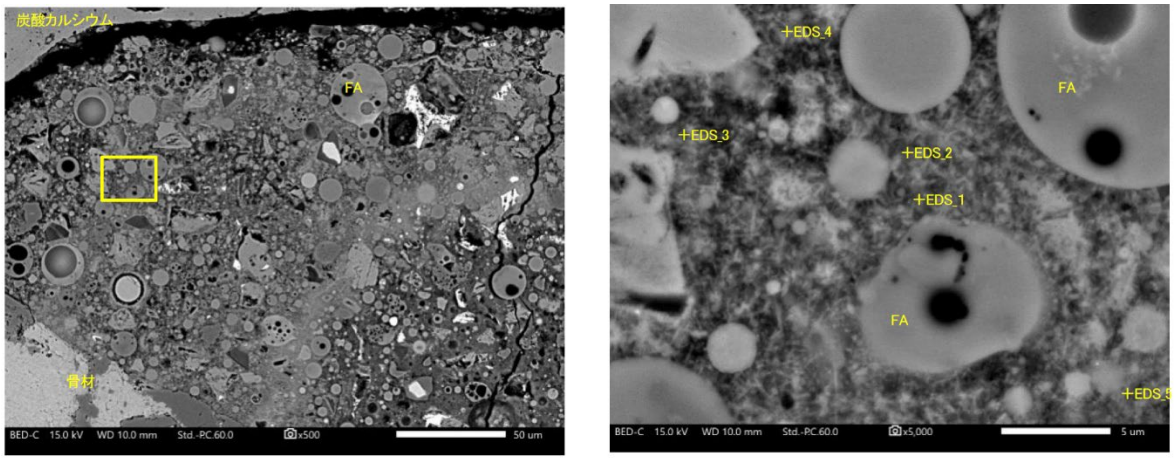
一方、気中養生試料と水中養生試料のそれぞれに対して変質部と健全部を比較すると、SEM 画像では変質部のほうが暗い部分である空隙が多かった。また、気中養生試料では変質部内部のセメントペースト部に、水中養生試料では変質部外側の試料表面近傍に、炭酸カルシウムの沈殿が確認された。EDS 分析の結果では、変質部は健全部と比べて CaO と SO_3 の濃度が有意に低く、SiO_2 濃度が有意に高くなっており、結果として C/S 比が有意に低くなっていた。これらの結果は、中性化の進行（図 2.2-57）による変質部での空隙率の増加（図 2.2.4-13）やエトリンガイトの溶解（図 2.2.4-15）、ならびに変質部内部での炭酸カルシウムの形成（気中養生試料）または地下水との接触により溶脱した Ca に由来する試料表面での炭酸カルシウムの形成（水中養生試料）（図 2.2.4-15）によるものと考えられ、これまでに述べてきた結果とも整合的である。



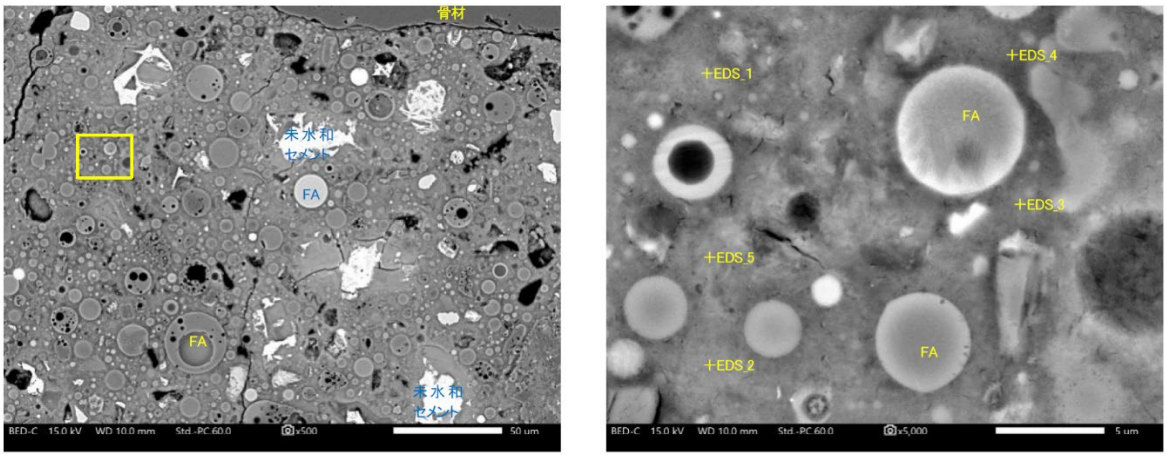
(a) 気中養生試料変質部



(b) 気中養生試料健全部



(c) 水中養生試料変質部



(d) 水中養生試料健全部

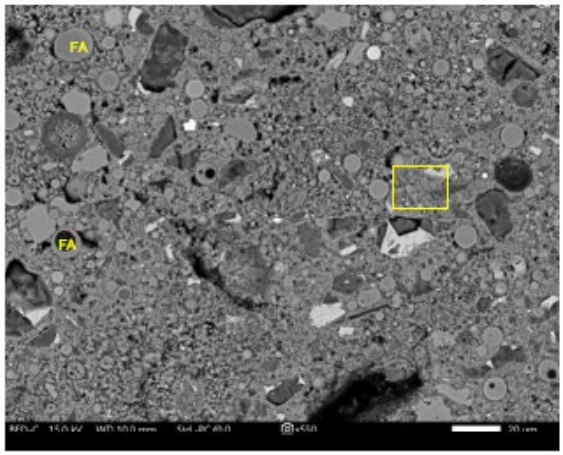
図 2.2-65　定置供試体のSEM観察結果（左：500倍、右：5,000倍）

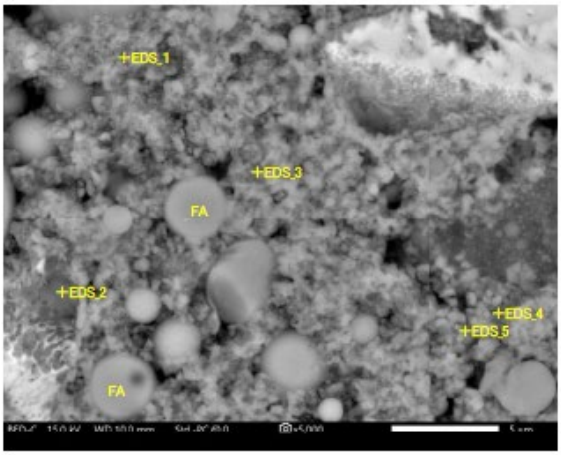
表 2.2-56　　定置供試体のEDS分析結果（平均値±標準誤差）

	CaO	SiO_2	Al_2O_3	SO_3	C/S	A/S
気中養生試料 変質部	9.9±0.3	44.4±1.4	7.0±0.3	0.7±0.1	0.24±0.01	0.19±0.01
気中養生試料 健全部	25.9±0.3	32.1±1.0	7.1±0.5	5.1±0.4	0.88±0.04	0.27±0.02
水中養生試料 変質部	13.5±1.0	44.8±0.9	6.7±0.2	0.3±0.02	0.32±0.02	0.18±0.01
水中養生試料 健全部	27.6±0.6	33.9±0.6	5.8±0.4	3.4±0.3	0.87±0.03	0.21±0.02

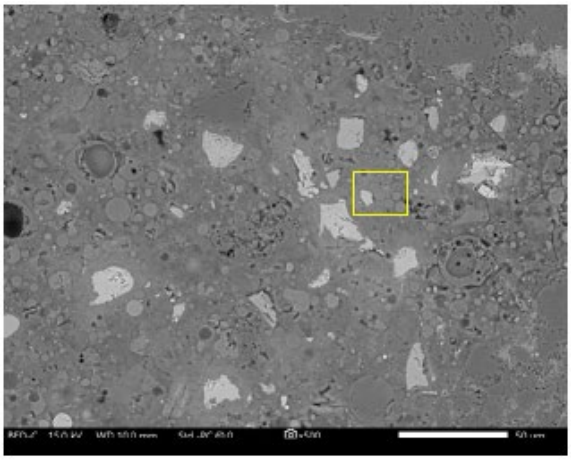
SEM 観察で C-S-H と推定された領域に対して実施された 10 点の測定結果より算出した。各成分の濃度は mass.%、C/S および A/S はモル比である。

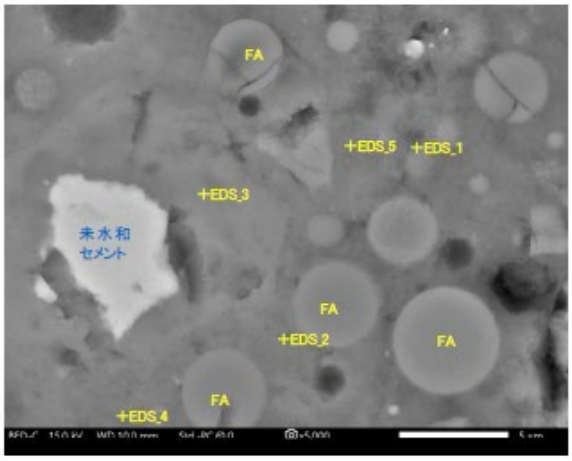
吹付け支保工供試体における SEM での観察結果の一例を図 2.2.4-19 に、SEM 観察から C-S-H と推定された領域に対して実施した EDS 分析の結果を表 2.2-57 にそれぞれ示す。坑道側および中央部試料の SEM 画像には空隙が多かった。EDS 分析の結果から、坑道側・中央部・岩盤側いずれの場所においても変質部は健全部に比べて CaO・SO_3 濃度ならびに C/S 比が有意に低く、SiO_2 比が有意に高かった。これらの結果は、定置供試体の場合と同様に、大気中の二酸化炭素との反応または地下水との接触による Ca 等の溶脱の結果として解釈可能である。また、同じ坑道側および岩盤側の試料であっても、特に変質部の元素濃度は試料番号間で有意に異なっていた（表 2.2-57）。吹付け支保工においては変質の度合いについても場所による不均質性があることが示唆された。さらに、岩盤側試料の変質部では CaO 濃度および C/S 比が他の変質部と比べて明瞭に低下しており、水中養生試料（図 2.2.4-15）とは異なり試料表面に炭酸カルシウムの沈殿が確認されなかった（図 2.2.4-16）。岩盤側では地下水との接触による Ca の顕著な溶脱が生じたこと、また前項でも述べたように、溶脱した Ca は地下水とともに流出して試料内に炭酸塩鉱物を形成しなかったことが示唆される。



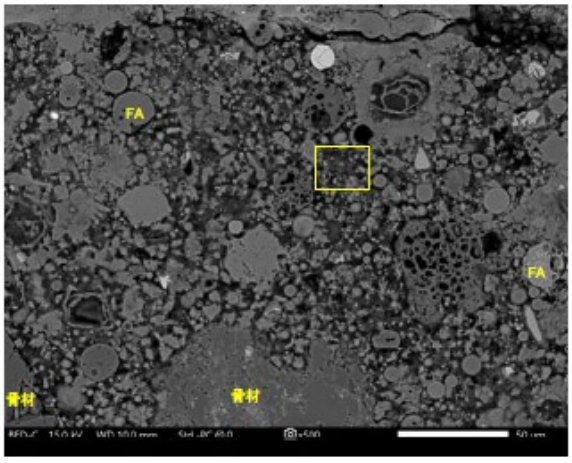


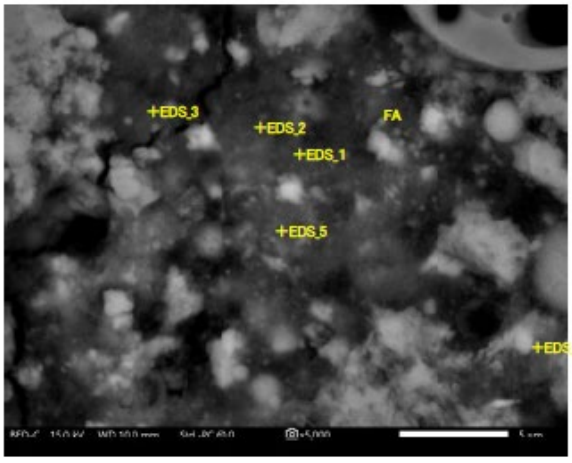
(a) No.12 坑道側変質部



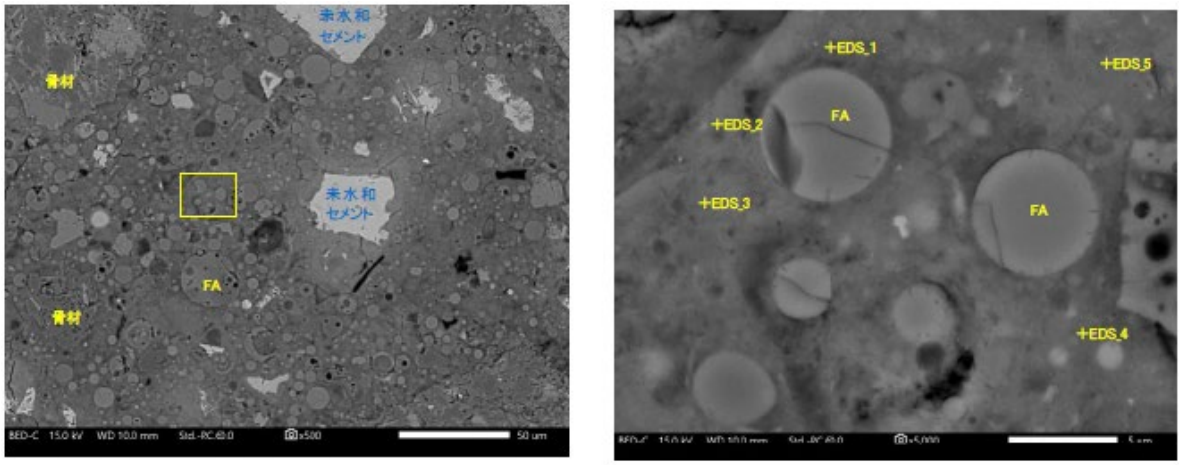


(b) No.12 坑道側健全部

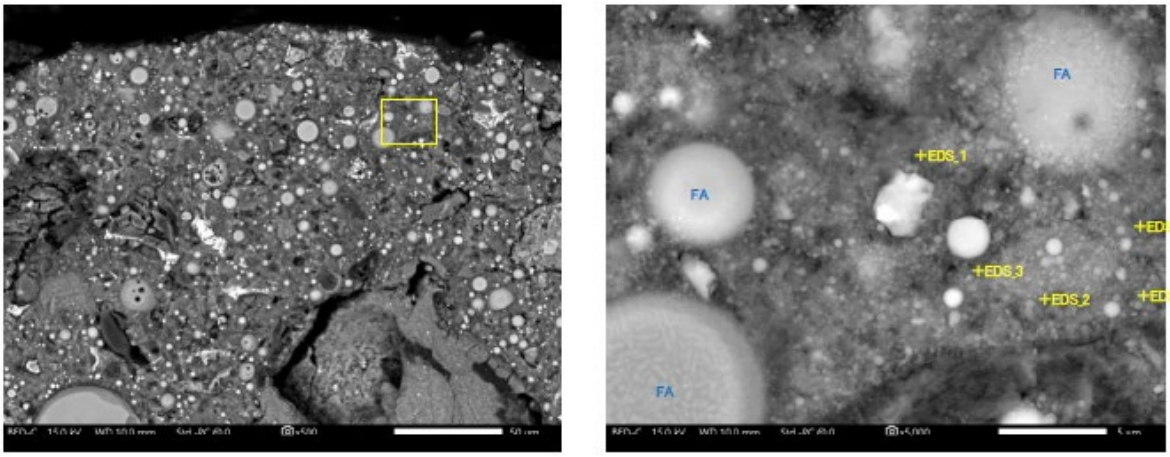




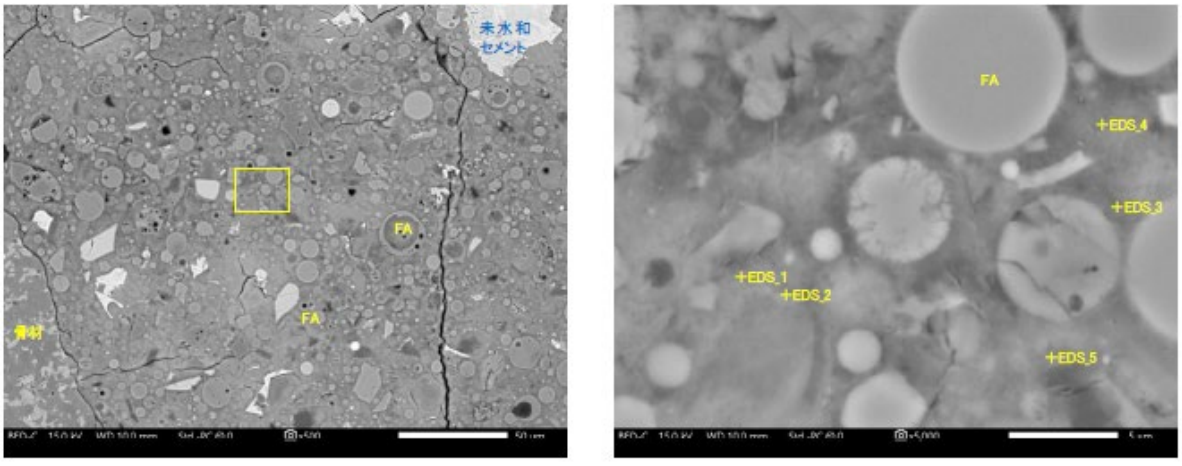
(c) No.2 中央部変質部



(d) No.2 中央部健全部



(e) No.12 岩盤側変質部



(f) No.12 岩盤側健全部

図 2.2-66 吹付け支保工供試体のSEM観察結果（左：500倍、右：5,000倍）

表 2.2-57　吹付け支保工供試体のEDS分析結果（平均値±標準誤差）

	CaO	SiO_2	Al_2O_3	SO_3	C/S	A/S
No.6 坑道側変質部	12.7±1.0	39.5±0.9	6.3±0.8	0.5±0.03	0.35±0.03	0.19±0.03
No.6 坑道側健全部	24.8±0.3	30.2±0.8	5.4±0.1	1.4±0.2	0.89±0.03	0.21±0.01
No.12 坑道側変質部	20.1±0.9	33.7±1.0	4.3±0.7	0.5±0.03	0.65±0.04	0.15±0.02
No.12 坑道側健全部	26.0±0.6	27.3±0.6	4.8±0.4	5.1±0.3	1.02±0.04	0.21±0.01
No.2 中央部変質部	11.1±0.7	40.8±1.2	6.7±0.2	1.3±0.4	0.30±0.02	0.20±0.01
No.2 中央部健全部	26.5±0.4	32.3±0.7	5.7±0.3	3.9±0.1	0.88±0.03	0.21±0.01
No.6 岩盤側変質部	2.1±0.2	48.8±1.3	7.0±0.3	—	0.05±0.005	0.17±0.01
No.6 岩盤側健全部	27.2±0.5	30.4±0.4	6.0±0.2	2.2±0.2	0.96±0.02	0.23±0.01
No.12 岩盤側変質部	1.7±0.1	46.9±0.9	6.5±0.3	0.5±0.04	0.04±0.004	0.16±0.01
No.12 岩盤側健全部	27.3±0.3	29.3±1.0	5.0±0.3	3.1±0.2	1.01±0.03	0.21±0.01

SEM 観察で C-S-H と推定された領域に対して実施された 10 点の測定結果より算出した。各成分の濃度は mass.%、C/S および A/S はモル比である。

(3) 成果と今後の課題

本研究の成果の概要は以下の通りである。

・力学特性：全般的に実際の吹付け支保工と比べると定置供試体の方が構造的に密で強度が大きい状態にあった。定置供試体では水和反応の進行にともなう強度の経年的な増加、吹付け支保工供試体では骨材・空隙の分布のばらつきや施工状況等、また両者の材齢の違いに起因すると考えられる。

・中性化：大気と接している部分では二酸化炭素との反応により、地下水と接している部分ではセメント成分の溶脱により、それぞれ中性化が進行していた。二酸化炭素との反応による中性化については本研究で対象とした HFSC でもコンクリート標準示方書などの既存の評価式からその速度をおおむね予測可能であったが、地下水と接触していることにより生じるセメント成分の溶脱による中性化には適用が困難であった。

・空隙構造・透水性：中性化領域では C-S-H の溶解により、相対的に大きい 0.01 μm 以上の空隙の割合が増加していた。試料の透水係数にはおおむね気中養生試料＞吹付け支保工坑道側≒吹付け支保工岩盤側＞水中養生試料の傾向が認められたが、測定結果のばらつきも大きいためさらなる検討を要する。いずれの試料においても透水係数は 10^{-10} m/s 以下であり、最大で約 10 年の変質を被った HFSC 試料においても低透水性が維持されていた。

・化学特性：中性化領域では、セメント成分である水和物の溶解による $CaO・SO_3$ 濃度および C/S 比の低下、CO_2 濃度や地下水中に含まれるイオン成分濃度（地下水と接している試料のみ）の増加が認められた。水中養生試料では中性化深さが 1 mm と薄く、試料表面に炭酸カルシウムの沈殿が認められたが、吹付け支保工の岩盤との接触部分では中性化深さがより厚く、鉱物の沈殿が認められなかった。これらの結果の違いには、地下水の供給量やコンクリートと岩盤との密着状態の違い、ならびに初期の施工状態や地下水との接触状況の違いに起因するコンクリートの空隙率分布の違いが関係していると考えられる。

今後も、定置供試体の経時的な物性・化学特性変化を評価するとともに、材齢の異なる吹付け支保工供試体の試験・分析を行い、HFSC の長期的な変質に関するデータを取得する。今後の課題として、水中養生試料と吹付け支保工の岩盤接触部試料を適宜比較しながら地下水との接触部分で生じる現象についての理解を深めること、また大気との接触により長期間中性化を被った試料が再冠水等により地下水と接触した場合に生じる変化についても理解を深めていくことが挙げられる。

2.2.5. 坑道周辺の環境状態の変遷

(1) 背景と目的

地下坑道において、坑道周辺岩盤に長期的に発生しうる現象の一つとして、クリープ変形がある。クリープ変形は、一定応力条件下において変形が継続する現象であるが、クリープ変形が坑道周辺で発生すると、地下施設の操業期間中における坑道の安定性への影響や、掘削損傷領域が拡大することによる岩盤内部における各種の移行経路の拡大が懸念される(OECD-NEA, 2019)。

令和 4 年度までの坑道周辺の環境状態の変遷に関する取り組みにおいては、幌延深地層研究施設の地下坑道周辺岩盤を事例として坑道周辺における坑道掘削から坑道埋戻しに至る周辺岩盤を対象とした数値解析を実施した。その結果、坑道掘削後の 50 年後には飽和度が坑道壁面表面では 30%、坑道壁面から 50cm 程度離れた位置では 70%程度まで低下することが示されている（原環センター・原子力機構, 2021；2022；2023)。一方で、岩石の力学的特性は岩石の水分量に影響を受けることが指摘されている（Hashiba et al., 2017；片岡ほか, 2017)。これらのことから、岩石のクリープ変形特性といった力学的特性の水分量に対する影響は、地下施設の操業期間中および閉鎖後における坑道周辺岩盤の長期挙動を評価する上で考慮すべき項目であると考えられる。

岩石のクリープ変形特性の水分量の依存性に関しては、羽柴ほか（2022）や Hashiba et al. (2018；2019)で標準的な岩石試料に関する既往の研究事例があるものの、令和 4 年度までの坑道周辺の環境状態の変遷に関する取り組みにおける坑道周辺岩盤の地質環境変化の数値シミュレーションにおける対象とした幌延のような堆積軟岩における検討事例は少ない。また、その数値シミュレーションで使用した東京大学で開発されてきたコンプライアンス可変型構成方程式によるクリープ変形の解析では、不飽和状態でのデータが取得されていなかったため、岩石の飽和度による影響を考慮していない。今後、坑道周辺における地質環境の長期的な予測解析において、より現実に即した状況を考慮したモデルの構築や保守的なモデルを構築するためには、様々な岩種においてこれらデータの取得およびその取得手法を構築する必要がある。

岩石のクリープ特性の把握は、数ヶ月から数年の期間の試験期間を必要とする場合がある（船戸ほか, 2017;福井ほか, 2017)。特定の飽和度に設定した岩石試料を用いて試験を実施する場合、このような長期間に及ぶ試験は困難であることが想定される。一方で、異なる載荷速度で一軸圧縮試験を実施することにより得られる載荷速度と岩石の強度の関係から、クリープ変形特性に関するパラメータの取得が試みられている（羽柴ほか, 2022)。載荷速度を変化させた一軸圧縮試験は、短期間で実施することが可能であるため、飽和度を所定の値に保った状況で試験をすることが比較的容易であると考えられる。そこで、幌延のような堆積軟岩においてクリープ特性の飽和度への依存性に関するデータを取得することおよびその測定手法の構築を目的として、異なる飽和度を有する岩石試料に対して載荷応力速度を変化させた一軸圧縮試験を実施した。

(2) 実施内容

今年度は、堆積軟岩における飽和度の変化による岩石強度への影響の有無を確認するため 70%および 100%の 2 段階の飽和度において試験を実施することとした。また試験手法自体の構築も重要であるため、本試験に先立ち予備試験を実施し、飽和度の設定方法や試験方法を検討し、その結果を踏まえ本試験を実施した。

1) 使用した岩石試料

今年度の試験では、幌延深地層研究センターの深度 350m で採取したコアサンプルを使用した。図 2.2-20 に採取した場所を示す。使用したコアは、令和 4 年 9 月に坑道の床面から鉛直方向に掘削した S-1 孔および S-2 孔のものであり孔径は 76mm で長さは 7.0m である。これらボーリン

グ孔は掘削損傷領域の調査およびグラウト試験によるグラウト注入状況の調査を目的として掘削されたボーリング孔であり、採取されたコアの一部の亀裂の表面にはグラウト材の存在が確認されている。また、これらボーリング孔の周辺では弾性波および比抵抗トモグラフィ調査が実施されており、底盤より 1m 程度の深度までは掘削損傷領域と考えられる弾性波速度が遅い領域が分布している（原子力機構・原環センター, 2023）。従って、試験に使用する岩石試料として、掘削損傷領域と考えられる領域の外である深度 3m 以深から採取されたものを主に使用した。また、深度ボーリングコアの乾燥を防ぐためにボーリング孔掘削直後に真空パックにより保存されたものを使用した。

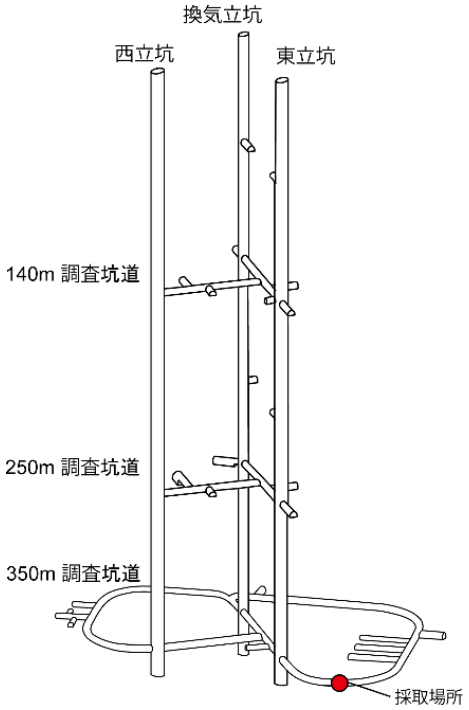


図 2.2-67　使用したコアの採取場所

幌延の岩石には、層理面が認められこの層理面は弱面となりうることから岩石の力学試験結果に影響されることが危惧される（Hashiba et al., 2017 ; Ishii, 2015）。岩石ブロック等から試料をコアリングする場合などは、層理面の方向を考慮して試験に用いる試料を制作することが可能であるが、本試験ではボーリング時に採取されたコアを試験に用いるため試験用の試料内における層理面の方向を制御できない。そこで、試験終了後に層理面の影響を検討できるよう岩石試料の X 線写真を撮影し、層理面の方向を計測した。図 2.2-21 に岩石コアの X 線写真の撮影結果を示す。これらの写真の結果より層理面は概ね 20~45° であることが確認された。

コアサンプルの保存状況の確認を目的として、湿潤密度の測定したところ、湿潤密度は 1.785～1.863 Mg/m^3 であり平均値は 1.830 Mg/m^3 で標準偏差 σ は 0.021 Mg/m^3 となった。本試験では、これらの試料のうち湿潤密度が平均値から 2σ の範囲内の試料を使用し、その他の試料は事前検討および予備用の試料とした。これらの試料に対して、ダイヤモンドカッター等で 13 cm 程度の長さに端面を整形した。土粒子密度の測定には、整形時に発生した残滓を用いて試験を実施した。表 2.2-58 に使用したコアを採取したボーリング孔、試料番号、採取深度及び試料開封後の湿潤密度を示す。

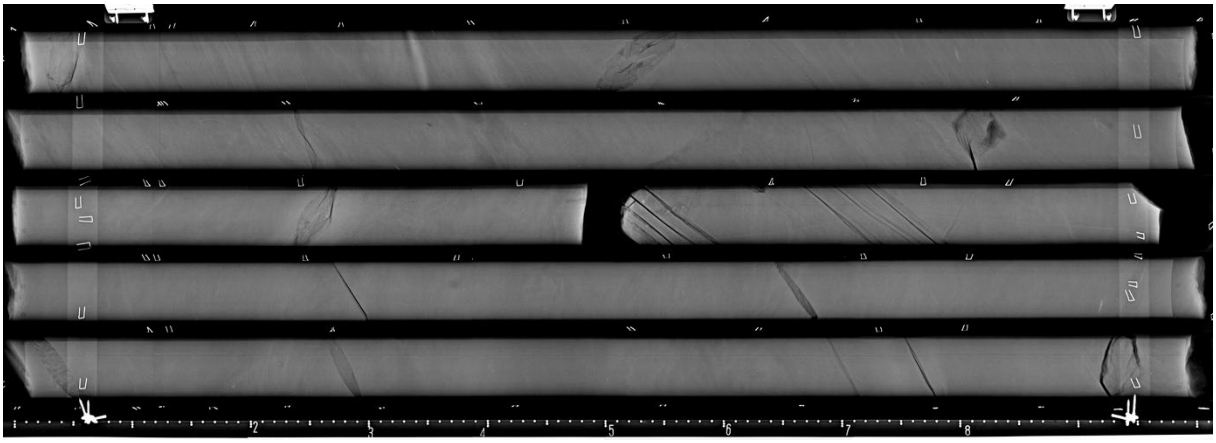


図 2.2-68　岩石試料のX線写真

表 2.2-58 使用したコアサンプルの詳細

孔番号	試料No.	採取深度 (m)		湿潤密度 (Mg/m^3)
		上端	下端	
S1	S1-1	3.01	3.14	1.842
S1	S1-11	3.14	3.27	1.835
S1	S1-12	3.27	3.39	1.825
S1	S1-2	3.47	3.60	1.832
S1	S1-3	3.87	4.00	1.840
S1	*S1-4	5.06	5.19	1.863
S1	*S1-5	5.19	5.32	1.849
S1	S1-6	5.57	5.70	1.814
S1	*S1-7	5.70	5.83	1.787
S1	S1-8	5.83	5.96	1.805
S1	S1-9	7.00	7.13	1.825
S1	S1-10	7.35	7.48	1.812
S1	*S1-13	5.32	5.45	1.848
S1	*S1-14	7.13	7.35	1.821
S2	*S2-1	0.83	0.96	1.785
S2	S2-2	3.07	3.20	1.818
S2	S2-3	3.31	3.44	1.827
S2	S2-4	3.44	3.57	1.803
S2	S2-5	3.57	3.70	1.834
S2	S2-6	3.80	3.93	1.843
S2	S2-7	4.00	4.13	1.833
S2	S2-8	4.13	4.26	1.857
S2	S2-9	4.30	4.43	1.856
S2	S2-10	4.43	4.56	1.854
S2	S2-11	4.68	4.81	1.849
S2	S2-12	4.81	4.94	1.835

*事前検討または予備試料

2)　予備試験による飽和度調整手法および試験手法の検討

試験に用いる岩石試料の飽和度を調整するために、予備試験を実施し、完全飽和させるための脱気時間、岩石試料に亀裂が生じない乾燥方法、所定の飽和度に達するまでに必要な乾燥時間の検討を行った。

岩石試料を飽和させるための水は、原位置の地下水の電気伝導度と同等の電気伝導度を有する

塩化ナトリウム水溶液を使用した。岩石試料を水槽内に浸し、水槽内を真空引きして脱気を行った。真空引きしてから 4 日後以降に水中重量の測定を 4 回実施し、その変化から脱気時間の検討を行った。

表 2.2-59 に脱気時間と測定した水中重量を示す。4 日以降、水中重量に系統的な変化がほとんど認められなかったため、本試験の脱気時間は 4 日間以上とした。

真空脱気した各々の試料に関して、乾燥時間の計測のため、S1-13 を室温 21℃の恒温で風乾、S1-14 を 40℃で炉乾した。風乾による乾燥では、819 分で、40℃炉乾燥では 400 分程度で飽和状態から所定の飽和度である飽和度 70%に到達した。図 2.2-22 に飽和度の変化のグラフを示す。40℃炉乾燥を行った試料には亀裂が生じたが、風乾条件の試料には亀裂が生じなかった(図 2.2-23)。従って、本試験では試験条件である 70%程度の飽和度の試料を作成するために 800 分程度、風乾条件により乾燥させることとした。

表 2.2-59 岩石試料を浸水時間および水中重量

試料番号	経過時間 (分)	水中重量 (g)
S1-13	5295	220.86
	5563	220.88
	6742	220.88
	7011	220.89
S1-14	5295	214.47
	5563	214.49
	6742	214.48
	7011	214.46

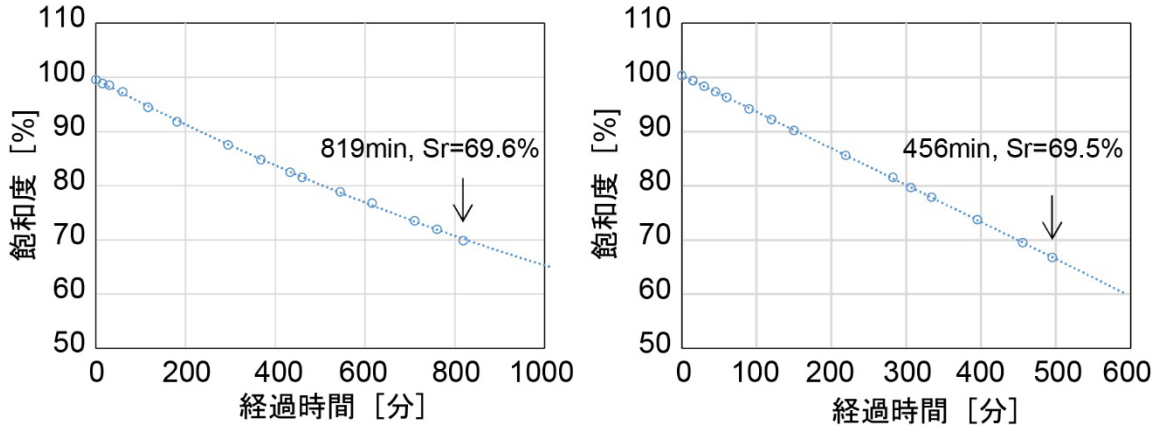


図 2.2-69　風乾による飽和度と乾燥時間（左図）および炉乾による飽和度と乾燥時間（右図）

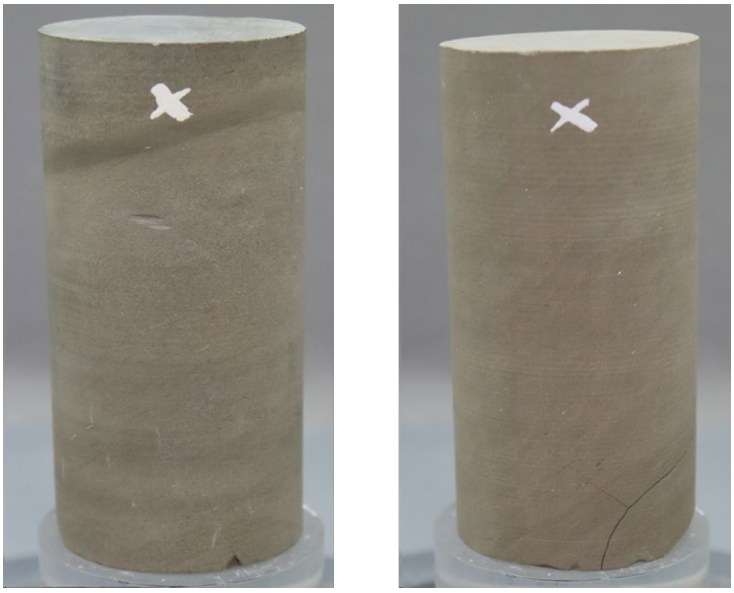


図 2.2-70　風乾（左図）および炉乾（右図）により飽和度を調整した試料

飽和度の制御方法の予備試験に加え、試験中における飽和度変化の評価および試験中の岩石のひずみ測定方法に関する検討も実施した。S1-7 の試料を上記の手順により飽和させ、今回の試験計画のうち最も遅い載荷応力速度である 2.0×10^{-3} MPa/s で予備試験を実施した。供試体には、側面の軸方向にひずみゲージ(PFL-10-11 東京測器研究所製)を張付けシリコンシーラントで防水処理をした後、ゴムスリーブで被覆し長さ 60mm の非接触型の LDT (Local Deformation Transducer, HMD-LDT 濱田電機製)を設置した。試験時間は、約 190 分程度ありその間の飽和度の変化は 99.2%から 98.5%と非常に小さい変化であった。飽和度制御のために実施した風乾による試験では、190 分程度の時間で岩石中の飽和度が 90%程度まで低下することから、ゴムスリーブにより試験中の飽和度の変化を抑制できていると評価できる。また、ひずみの計測に関しては、図 2.2-24 に示す通り非接触型の LDT の方が、ひずみゲージと同程度の精度でかつ、ひずみゲージの剥がれ等がない分、広範囲のひずみを測定できることが確認された。

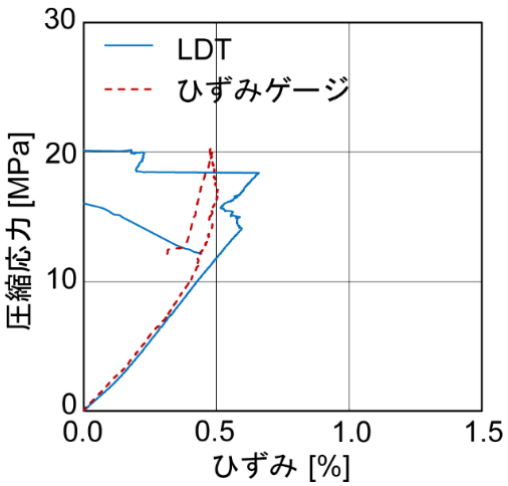


図 2.2-71　予備試験におけるひずみゲージとLDTによる測定結果の比較。ひずみは圧縮方向を正として表示。

これらの予備試験の結果より本試験は、以下の手順で試験を実施した。

1. 試料の端面整形
2. 残滓を使用した含水比測定
3. 岩石試料の飽和度調整
4. 飽和度 100%の場合：1500 mS/m の塩化ナトリウム水溶液の脱気水槽に 4 日以上水浸し、2 回以上水中重量を測定し質量変化が十分に小さいことを確認する。
5. 飽和度 70%の場合：設定飽和度を満たす質量となるまで風乾により乾燥する
6. 重量測定による試験前の岩石試料の飽和度の算出
7. ゴムスリーブで被覆
8. LDT の取り付け
9. 一軸圧縮試験の実施

3) 本試験結果

予備試験により検討した手法により、飽和度を調整した岩石試料を用いて、異なる載荷応力速度で一軸圧縮試験を実施した。表 2.2-60 に試験を実施した載荷応力速度と試料数を示す。載荷応力速度は、試験で使用する資機材の能力および載荷応力速度を対数軸で表示した場合に概ね等間隔となるように設定した。また、本試験に使用した飽和度を調整した後の岩石試料の重量および飽和度等を表 2.2-61 に示す。

飽和度調整前の試料の湿潤密度および乾燥密度の平均値は 1.82 Mg/m^3 および 1.42 Mg/m^3 であり全試料における各々のバラつきは 2%および 3%以内であった。また、飽和度は平均 95%で間隙率は平均 42.5%でそのバラつきは各々4%以内であった。飽和度調整後の飽和度に関して、100%を目標に飽和度を調整した試料では平均 99.5%で 70%を目標に飽和度を調整した試料では平均 70.2%であり、そのバラつきは 2%以内であった。これらの測定結果を図 2.2-25 に示す。このように、使用する試料の重量は概ね均質であり、飽和度も概ね一様に所定の値に調整することができた。

表 2.2-60　実験を実施した載荷応力速度と試料数

載荷応力速度 （MPa/s）	試料数　飽和度 (100%)	試料数　飽和度 (70%)
1.000	2	2
0.200	2	2
0.050	2	2
0.010	2	2
0.002	2	2

表 2.2-61　飽和度調整後の試験に用いた試料の重量等

飽和度条件	試料番号	採取深度 (m) 上端	下端	含水比 (%)	湿潤密度 (Mg/m3)	乾燥密度 (Mg/m3)	間隙比 (%)	飽和度 (%)
100	S1-1	3.01	3.14	29.5	1.846	1.425	73.1	99.5
100	S1-11	3.14	3.27	29.3	1.848	1.429	72.6	99.5
100	S1-12	3.27	3.39	29.5	1.838	1.419	73.8	98.6
100	S1-8	5.83	5.96	32.2	1.820	1.377	79.1	100.4
100	S1-9	7.00	7.13	31.0	1.835	1.401	76.0	100.6
100	S2-3	3.31	3.44	30.9	1.838	1.404	75.6	100.8
100	S2-4	3.44	3.57	31.0	1.811	1.382	78.4	97.5
100	S2-5	3.57	3.70	29.5	1.836	1.418	73.9	98.4
100	S2-10	4.43	4.56	28.4	1.857	1.446	70.5	99.3
100	S2-11	4.68	4.81	29.0	1.855	1.438	71.5	100.0
70	S1-2	3.47	3.60	21.1	1.718	1.419	73.8	70.5
70	S1-3	3.87	4.00	20.7	1.729	1.432	72.2	70.7
70	S1-6	5.57	5.70	21.1	1.720	1.420	73.7	70.6
70	S1-10	7.35	7.48	21.6	1.697	1.396	76.6	69.5
70	S2-2	3.07	3.20	21.4	1.707	1.406	75.4	70.0
70	S2-6	3.80	3.93	19.7	1.736	1.450	70.1	69.3
70	S2-7	4.00	4.13	20.1	1.729	1.440	71.3	69.5
70	S2-8	4.13	4.26	19.4	1.753	1.468	68.0	70.4
70	S2-9	4.30	4.43	19.5	1.753	1.467	68.1	70.6
70	S2-12	4.81	4.94	20.7	1.726	1.430	72.4	70.5

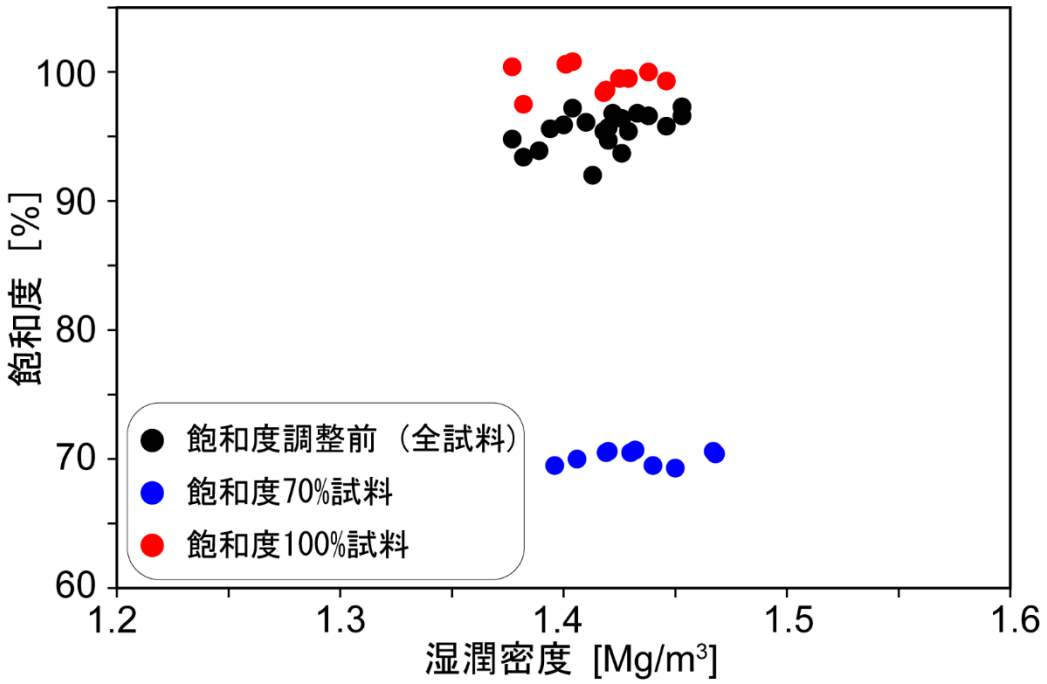


図 2.2-72　試験に使用した試料の湿潤密度と飽和度

飽和度調整した試料を用いて、異なる載荷応力速度で実施した一軸圧縮試験の結果を表 2.2-62 および表 2.2-63 に示す。 表 2.2-62 に飽和度が 100%の場合の結果を表 2.2-63 に飽和度が 70%の場合の結果を示す。また、図 2.2-26 に飽和度を 100%および 70%に設定し載荷応力速度を 2.0 × 10^{-3} MPa/s で試験を実施した後の S1-9 および S1-10 試料の写真を、図 2.2-27 に S1-6 を除く全試料の試験中の応力ひずみ曲線を示す。なお、飽和度を 70%の場合の測定に用いた試料 S1-6 は、弾性係数および一軸圧縮強さが極端に大きな値を示した。この結果は、岩盤の不均質性に由来する岩石の局所的な硬質部による影響であると予測されることから、予備試料 S2-1 を用いて再試験を実施した。

図 2.2-28 は、飽和度が 100%の場合の弾性係数(E_{s50})および一軸圧縮強さである。弾性係数および一軸圧縮強さは、載荷応力速度が速いほど大きな値を示している。これらの値は、既存研究で取得されている結果と概ね整合的な値であった（Aoyagi and Ishii, 2018）。図 2.2-29 に飽和度が 70%の場合の弾性係数および一軸圧縮強さ示す。飽和度が 70%の場合も飽和度が 100%の場合と同様に、載荷応力速度が速くなるにつれて弾性係数および一軸圧縮強さが大きくなる傾向が認められる。また、飽和度が 70%の場合の方が測定結果のバラつきが大きくなる結果となっている。

飽和度が異なる場合の比較では、載荷応力速度が 5.0 ×10^{-2} MPa/s 以下の場合には飽和度が 100%と 70%の場合で弾性係数に大きな違いは見られないものの、載荷応力速度が 2.0 ×10^{-1} MPa/s 以上の場合には飽和度が 70%の場合の方が 100%の場合と比較して大きな値を示している。一軸圧縮強さに関しては、全体的に飽和度が 70%の方が大きな値を示した。

表 2.2-62　飽和度100%の岩石試料を用いた、載荷応力速度を変化させた場合の一軸圧縮試験結果

試料番号	採取深度 (m)		飽和度 (%)	載荷応力速度 (MPa/s)	一軸圧縮強さ (MPa)	弾性係数 (GPa)
	上端	下端				
S1-9	7.00	7.13	100.6	0.002	16.8	2.09
S2-10	4.43	4.56	99.3	0.002	15.5	2.17
S1-8	5.83	5.96	100.4	0.010	17.6	2.33
S2-11	4.68	4.81	100.0	0.010	16.6	2.05
S1-1	3.01	3.14	96.4	0.050	17.2	2.25
S2-3	3.31	3.44	99.5	0.050	18.2	2.52
S1-12	3.27	3.39	98.6	0.200	17.4	2.39
S2-4	3.44	3.57	97.5	0.200	19.1	2.72
S1-11	3.14	3.27	99.5	1.000	22	2.95
S2-5	3.57	3.70	98.4	1.000	17.5	2.71

表 2.2-63　飽和度70%の岩石試料を用いた、載荷応力速度を変化させた場合の一軸圧縮試験結果

試料番号	採取深度 (m)		飽和度 (%)	載荷応力速度 (MPa/s)	一軸圧縮強さ (MPa)	弾性係数 (GPa)
	上端	下端				
S1-10	7.35	7.48	69.5	0.002	14.7	2.01
S2-2	3.07	3.20	70.0	0.002	22.2	2.11
S1-2	3.47	3.60	70.5	0.010	24.4	2.17
S1-6	5.57	5.70	70.6	0.010	40.4	5.85
S2-1*	0.83	0.96	70.0	0.010	19	2.05
S2-12	4.81	4.94	70.5	0.050	28.3	2.41
S1-3	3.87	4.00	70.7	0.050	20.4	2.30
S2-9	4.30	4.43	70.6	0.200	21.3	2.70
S2-6	3.80	3.93	69.3	0.200	32.1	4.09
S2-7	4.00	4.13	69.5	1.000	37.9	3.77
S2-8	4.13	4.26	70.4	1.000	33.7	3.00

*再試験結果

図 2.2-73　一軸圧縮試験後のS1-9（左図）およびS1-10（右図）試料

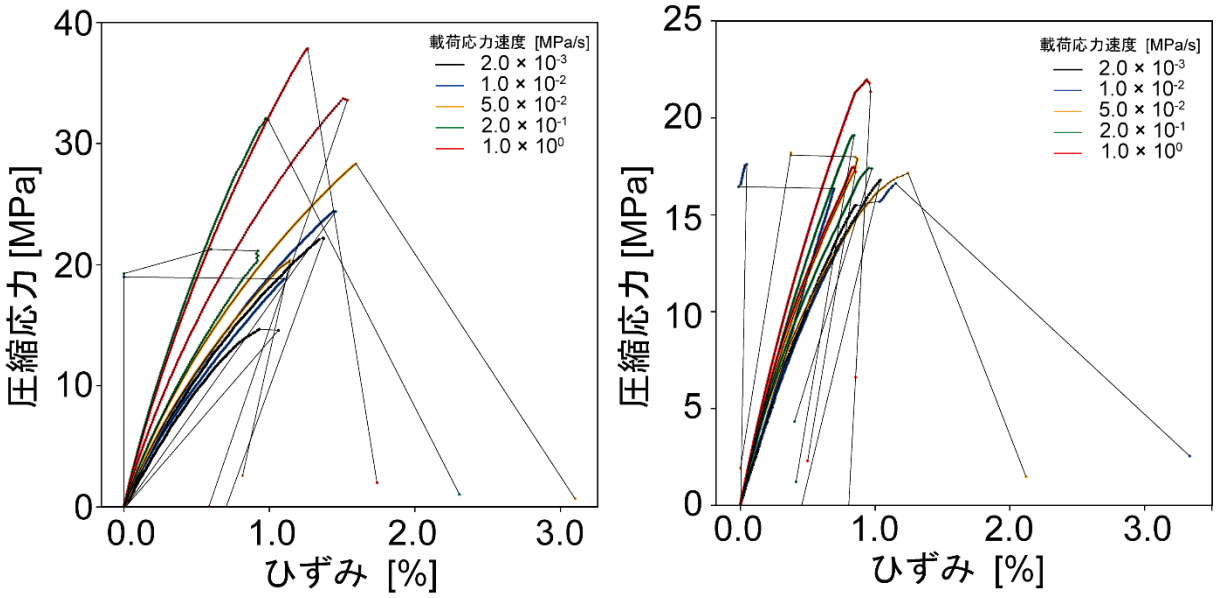


図 2.2-74 飽和度を70%に設定した場合（左図）と70%に設定した場合（右図）の全試料における応力ひずみ曲線。ひずみは、圧縮方向を正として表示。

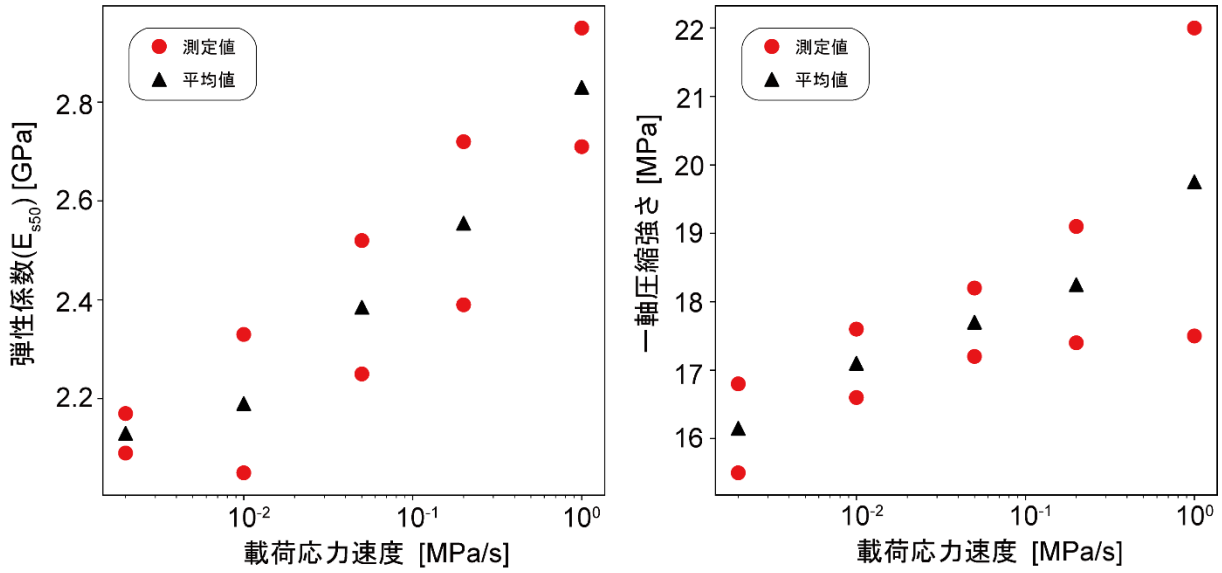


図 2.2-75　飽和度が100%の場合の弾性係数（E_{s50}）（左図）および一軸圧縮強さ（右図）

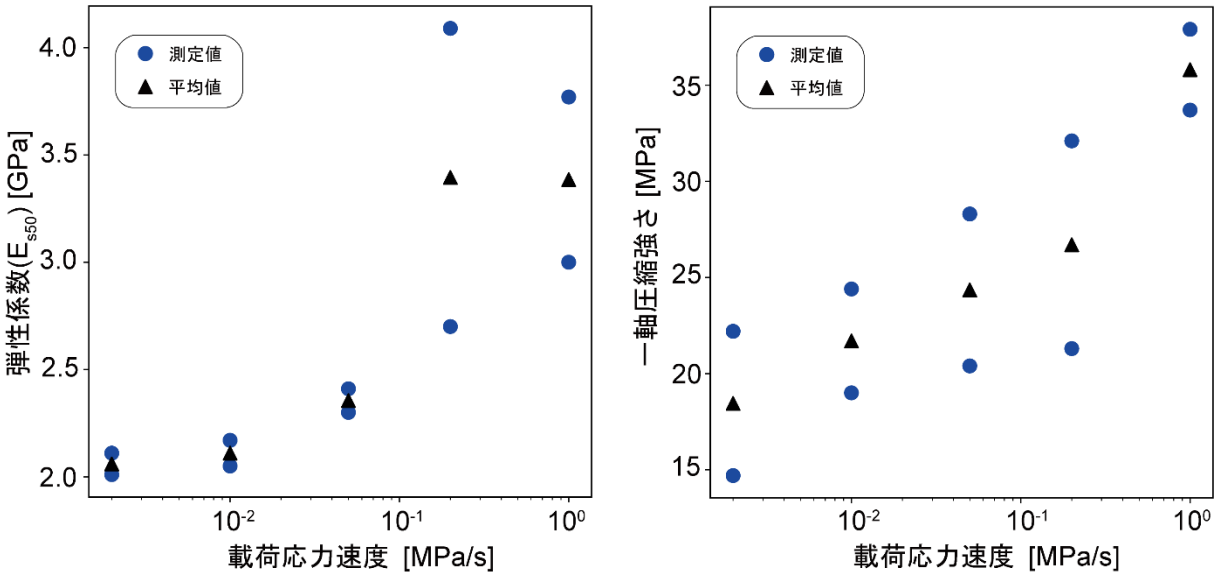


図 2.2-76　飽和度が70%の場合の弾性係数（E_{s50}）（左図）および一軸圧縮強さ（右図）

これら岩石の一軸圧縮強さの載荷速度依存性の測定結果を、コンプライアンス可変型モデルを用いて評価する。岩石の強度等の時間依存性を記載する構成則の一つとして、コンプライアンス λ が経時変化するモデルが提案されている（大久保ほか、1993）。 Hashiba et al. (2018) ではこのモデルを拡張し、飽和度を考慮したモデルとして以下の式を提案している。

$$\frac{d\lambda}{dt} = a\exp(b\sigma) \qquad \text{式(2.2-14)}$$

ここで、aは飽和度に依存するパラメータ、bは飽和度に依存しないパラメータ、σは応力である。次式で示す通り λ が値ある値に到達すると岩石が破壊すると仮定している。

$$\Lambda = \int_o^t \frac{d\lambda}{dt} dt \qquad \text{式(2.2-15)}$$

応力速度が一定の条件で式(2.2-14)および式(2.2-15)を解くと岩石の強度は以下の式で示すことができる。

$$\sigma_f = \frac{1}{b} log \frac{\Lambda b \dot{\sigma}}{a} \qquad \text{式(2.2-16)}$$

ここで、σ_fは岩石の一軸圧縮強さを、$\dot{\sigma}$は応力速度を示す。式(2.2-16)に関して、載荷応力速度が同じ場合において､飽和度が異なる場合の一軸圧縮強さの差分を計算すると以下の式が得られる。

$$\sigma_f(\theta) - \sigma_{f,w} = \frac{1}{b} log \frac{a_w}{a(\theta)} \qquad \text{式(2.2-17)}$$

ここで、θは飽和度を、$\sigma_f(\theta)$は飽和度θにおけるある載荷応力速度おける一軸圧縮強さを、$\sigma_{f,w}$は飽和状態におけるある載荷応力速度おける一軸圧縮強さを、a_wは飽和状態におけるパラメータaの値を、$a(\theta)$は飽和度がθにおけるパラメータaの値を示す。Hashiba et al. (2018) では、式(2.2-14)および式(2.2-15)をひずみ速度を一定の条件で解きくことでクリープ寿命を求めており、飽和度が異なる場合のクリープ寿命の比は以下の式で示される。

$$t_{cr,w} = \frac{a(\theta)}{a_w} tr_{cr}(\theta) \qquad \text{式(2.2-18)}$$

ここで、$t_{cr,w}$は飽和状態における岩石のあるひずみ速度におけるクリープ寿命を、$tr_{cr}(\theta)$は飽和度θにおける岩石のあるひずみ速度におけるクリープ寿命を示している。

今回取得した岩石強度の載荷速度依存性のデータに対して Nedler-Mead 法(Gan and Han, 2012)を用いた最適化により式(2.2-16)を適用し、各パラメータを求めた。図 2.2-30 に結果を示す。式(2.2-16)では、一軸圧縮強さは載荷応力速度の対数値に対し比例関係となることを示しており、その傾きは飽和度に依存しない。一方で、今回の試験結果では載荷応力速度が速い場合の測定結果においてこの直線からの乖離が大きくなっている。この原因として試験期間中の間隙水圧の上昇等が理由として考えられる。今回の試験結果では、飽和度が 70%の場合に測定された一軸圧縮強さにバラつきが大きいものの、概ね飽和度が低い方が岩石強度が高くなる結果となった。式(2.2-18)により飽和度が 100%の場合と 70%のクリープ寿命の比率を計算したところ飽和度が 70%の場合の方がクリープ寿命が約 130 倍長くなる結果となった。

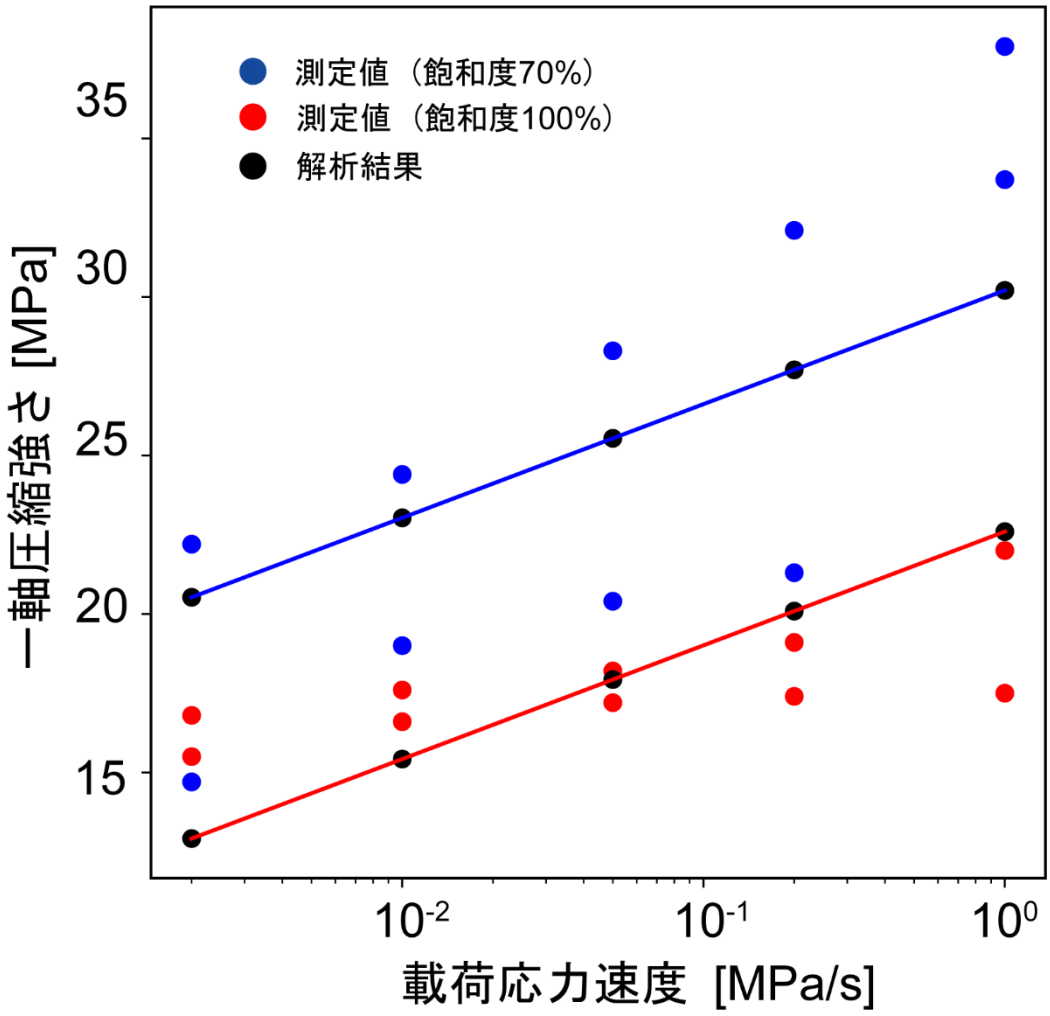


図 2.2-77　測定結果に式(2.2-16)を適用した結果

(3) 成果と今後の課題

岩石の力学的挙動の長期変化に資するデータの取得およびその取得手法の構築を目的として、幌延深地層研究センターの深度 350m で採取した岩石試料を用いて、異なる載荷応力速度で一軸圧縮試験を実施し、Hashiba et al. (2018)等により提案されているモデルの適用を試みた。特に坑道周辺では、長期的に顕著な飽和度の変化が予測されることから、異なる飽和度の岩石を用いた試験を実施した。試験に先立ち、岩石試料を亀裂の発生を防ぎつつ所定の飽和度に調整するための手法を検討するための予備試験を実施した。岩石を風乾させることにより飽和度 70%程度までは、亀裂等発生することなく飽和度を調整できることを確認した。飽和度が 100%の試料と 70%の岩石試料に対し、５段階の載荷速度で一軸圧縮試験を実施した。この試験では、載荷応力速度が速いほど一軸圧縮強さが高く、また飽和度が 70%の場合の方が一軸圧縮強さが高くなることを確認することができた。得られた結果から、Hashiba et al. (2018)に基いて飽和度が 70%の場合と 100%の場合のクリープ寿命の差を計算したところ、飽和度が 70%の場合の方が飽和度が 100%の場合と比較してクリープ寿命が約 130 倍長くなることが推察された。なお、稚内層の岩石の浸透率は、10^{-20}–10^{-18} m^2 と低いことから試験中における水圧上昇の影響に関しては、今後、数値解析等を通して検討する必要がある。今年度は、飽和度が 70%の場合と 100%の 2 段階の飽和度で試験を試みたが、飽和度による有意な岩石強度の違いが認められたことから、より低い飽和度におけるデータの取得を含め様々な飽和度でデータを取得し、岩石強度の飽和度依存性に関する系

統的なデータを取得することが課題の一つである。本試験は、坑道周辺岩盤の長期挙動解析のためのデータ取得やその手法の構築を第一の目的として実施しているが、岩石強度の載荷速度や飽和度に対する関係性の評価は、坑道掘削時に岩盤を健全な状態に保つための支保のタイミングや排水時間等の考察にも活用可能であると考えられる。

2.2.6. 緩衝材変質

(1) 背景と目的

多重バリアシステムにおける人工バリアのひとつである緩衝材は、廃棄体への地下水の接触と核種の移行を抑制するために、低透水性、自己シール性（膨潤性）、地下水に対する化学的緩衝性能、核種の収着能力、応力緩衝性等の多くの機能が期待されており、これらの機能が長期にわたって健全に保持されることが要求される。処分場閉鎖後、緩衝材は地下水や隣接する人工バリア材(例えば、オーバーパック)との相互作用により、二次鉱物の沈殿をはじめとしたセメンテーションを生じ、緩衝材に期待されていた機能が低下する可能性がある。

先行事業である「ニアフィールドシステム評価確証開発」では、山形県月布産のベントナイト鉱山から採取した現鉱石試料を用いて、セメンテーション物質の産状や、それによる基本特性への影響について調査を行った。また、処分環境で生じうるセメンテーションに関して文献調査を行うとともに、実験的にセメンテーションした試料を作成する方法についても検討を行った。

令和 5 年度は、先行事業にて実施した、ベントナイト中での炭素鋼腐食試験の試料を対象に顕微鏡観察を行い、ベントナイト中に生成した二次鉱物について、産状観察とキャラクタリゼーションを行った。また、緩衝材が周辺材料と相互作用することで二次鉱物が沈殿して生じるセメンテーションによる影響を評価するために、ベントナイト試料にセメンテーションを生じさせる試験を行い、基本特性への影響を調べるとともに、生成した二次鉱物の産状観察およびキャラクタリゼーションを行った。

(2) 実施内容

ベントナイトがセメンテーションを被ることによる各種特性の変化を把握するために、ベントナイト試料（クニゲル V1）を用いて、実験的にセメンテーションを生じさせる手法の開発を行った。作製したセメンテーション試料については、電子顕微鏡等による観察を行い、セメンテーションの範囲や状態（例えばセメンテーション物質とモンモリロナイトの接合）などの調査を行った。

今年度は、下記の観察および検討を行った。

１）炭素鋼腐食試験試料中のセメンテーション物質の観察

２）セメンテーション試料作製に関する実験的検討

1) 炭素鋼腐食試験試料のセメンテーション物質の観察

廃棄体が処分場に定置された直後の短期間には、緩衝材が高温のオーバーパックと接すると考えられる。これにより、緩衝材中の間隙水が蒸発することで溶存成分が濃縮し、より高い温度条件で炭酸塩や硫酸塩などの溶解度が低下することと相まって、硫酸塩が析出する可能性が考えられる。

一方で、炭素鋼とベントナイトを接触させた条件で行われた既往の腐食試験では、界面近傍に鉄を含む炭酸塩鉱物である siderite が確認されている（谷口ら、2010）。こうした炭酸塩が炭素鋼表面やベントナイト空隙に形成することで、腐食速度や緩衝材の特性に影響を及ぼす可能性が考えられる。

そこで本検討では、炭素鋼とベントナイトを接触させて行われた炭素鋼腐食試験試料を対象に分析を行い、ベントナイト中に生成している二次鉱物（硫酸塩・炭酸塩）の産状について調査を行った。

①　試料

観察に供した試料は、高硫酸イオン濃度(Na_2SO_4飽和濃度)の水溶液中で腐食試験を行った炭素鋼―ベントナイト接触試料のうち、ベントナイト部である。(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2022)

炭素鋼―ベントナイト接触試料は、チタン製のカラム内に炭素鋼試験片(JIS G3106 SM400B、30×30×2 mm）と緩衝材（ケイ砂混合ベントナイト：クニゲル V1 70 wt% + ケイ砂 30 wt%、密度 1.6 Mg/m^3）を封入して作成した。試験溶液には飽和 Na_2SO_4 水溶液を用い、窒素雰囲気のグローブボックス内（酸素濃度 1 ppm 以下）で 24 時間以上通気して溶存酸素を除去した。これらの接触試料と試験溶液を密閉容器内に封入し、試験温度 80℃で 1095 日間静置した。試験後、炭素鋼試験片と緩衝材を分離し、緩衝材側については樹脂含浸を行い、接触面に直行する断面で切断・研磨して観察試料を作製した。

②　分析手法

走査電子顕微鏡（SEM）観察は、JSM-IT200（JEOL）を使用し、加速電圧 15 kV で二次電子像と反射電子像を取得し、エネルギー分散型 X 線分光（EDS）による元素組成分析を行った。なお、試料表面の導電性を確保するため、観察前に EC-32010CC（JEOL）を用いて炭素蒸着を施した。

また、試料中の硫酸塩鉱物を同定するために、XploRA plus（HORIBA）を用いて顕微ラマン分光分析を行った。測定には 532 nm のレーザーを用い、対物レンズ 50 倍、グレーティング 1800、スリット 100 μm、共焦点ホール 300 μm、露光時間 2 秒間、積算回数 200 回、減光フィルター25%の条件にて測定を行った。

③　結果と考察

観察した試料の外観を図 2.2-31 に示す。約 8 mm の厚さの緩衝材（ケイ砂混合ベントナイト）試料であり、試料左側の炭素鋼との接触面はやや茶色を呈していた。なお、黒色部分は試料の固定に用いたカーボンテープである。

試料の反射電子組成像を図 2.2-32 に示す。図 2.2-32a の左側が炭素鋼ーベントナイト界面に対応しており、その界面から約 10 μm 程度の範囲では、他の部分と比べて輝度が高い領域が確認できた。この輝度の高い領域には siderite が存在しており（図 2.2-32a, b）、元素組成分析から、Siderite は Ca と微量の Mn および Mg を含有することが確認された（表 2.2-64）。Siderite 粒子の元素組成は試料内でおおよそ均一であり、化学組成は $Fe_{0.77}Ca_{0.17}Mn_{0.03}Mg_{0.03}CO_3$(Ca/Fe 比～0.22)であった。

一方、ベントナイト中では硫酸塩が点在する産状も確認された（図 2.2-32a の白矢印）。硫酸塩の生成量については、炭素鋼界面からの距離との相関は確認できなかった。この硫酸塩は Na と Ca に富んでおり（表 2.2-65）、平均組成は $Na_{0.88}Ca_{0.53}SO_4$ であった。Na と Ca を含む硫酸塩粒子として、混合物と固溶体の可能性が考えられるが、顕微ラマン分析より固溶体(glauberite)であることを確認した（図 2.2-33）。硫酸塩中 Na/Ca 比については、理想値の 2 よりも低い値を示す分析点が確認されており、研磨面上での凹凸や EDS 分析中の Na の拡散による影響が考えられる。

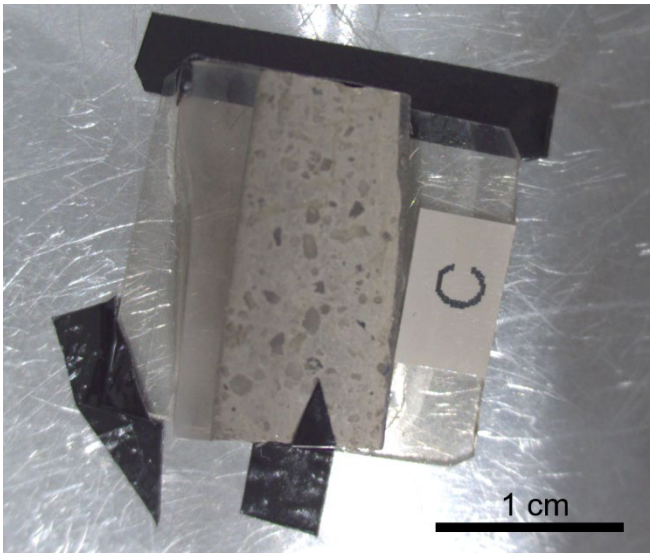


図 2.2-78　試験片の外観

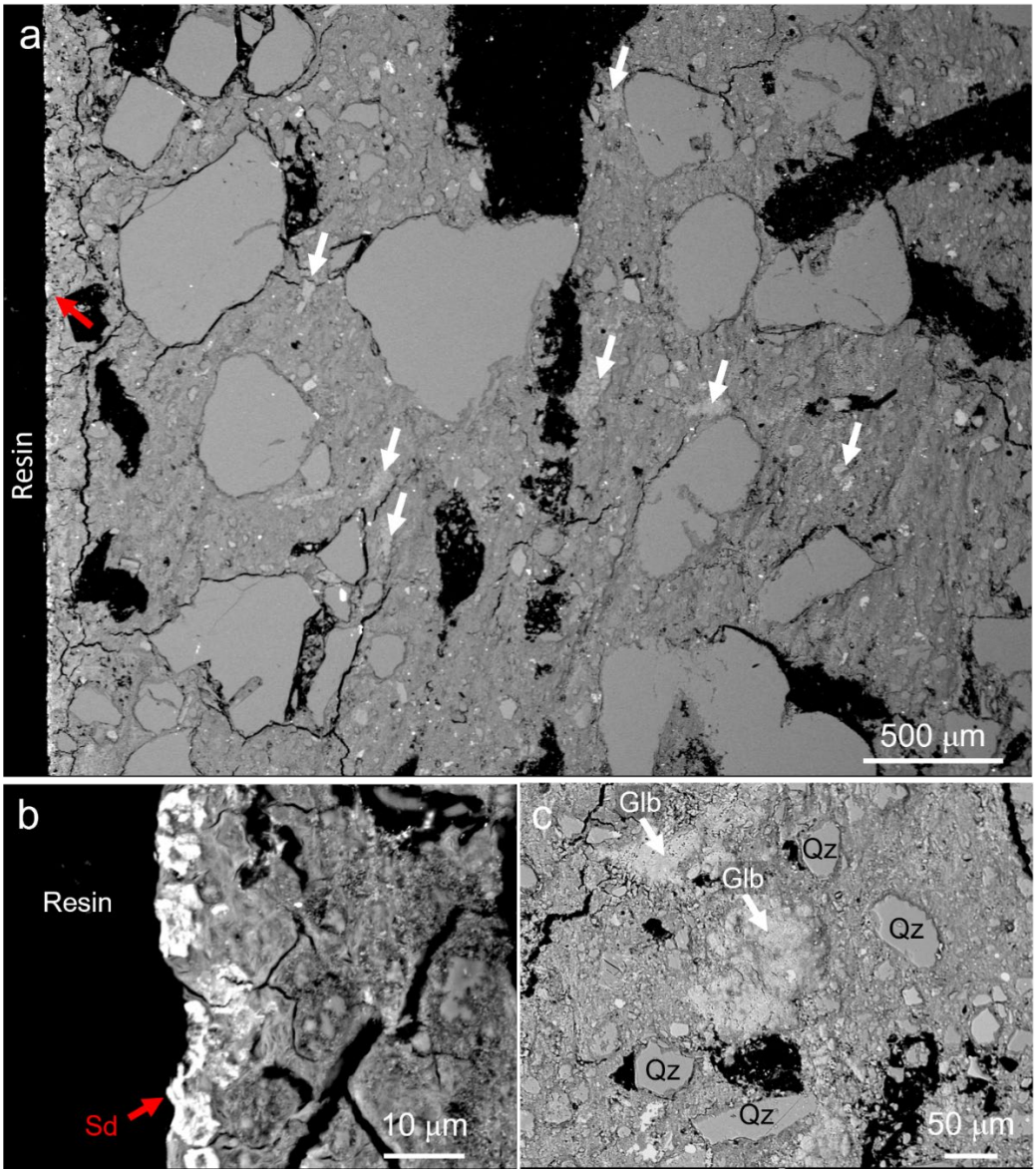


図 2.2-79　二次鉱物の産状

(a) 低倍率での組成像。赤矢印はsideriteの分布、白矢印はglauberiteの分布を示す。Sd: siderite, Glb: glauberite, Qz: quartz

表 2.2-64　Sideriteの化学組成

	Fe	Ca	Mn	Mg	Ca/Fe
Spc_001	0.77	0.17	0.03	0.03	0.22
Spc_002	0.77	0.17	0.03	0.02	0.22
Spc_003	0.76	0.18	0.03	0.02	0.24
Spc_004	0.76	0.17	0.04	0.03	0.22
Spc_005	0.77	0.16	0.04	0.03	0.21
平均	**0.77**	**0.17**	**0.03**	**0.03**	**0.22**

表 2.2-65　硫酸塩の化学組成

	Na	Ca	SO_3	Na/Ca
Spc_006	0.81	0.57	1.01	1.42
Spc_008	0.77	0.57	1.01	1.35
Spc_012	0.95	0.49	1.01	1.94
Spc_013	0.76	0.51	1.04	1.49
Spc_014	1.10	0.49	0.99	2.25
平均	**0.88**	**0.53**	**1.01**	**1.70**

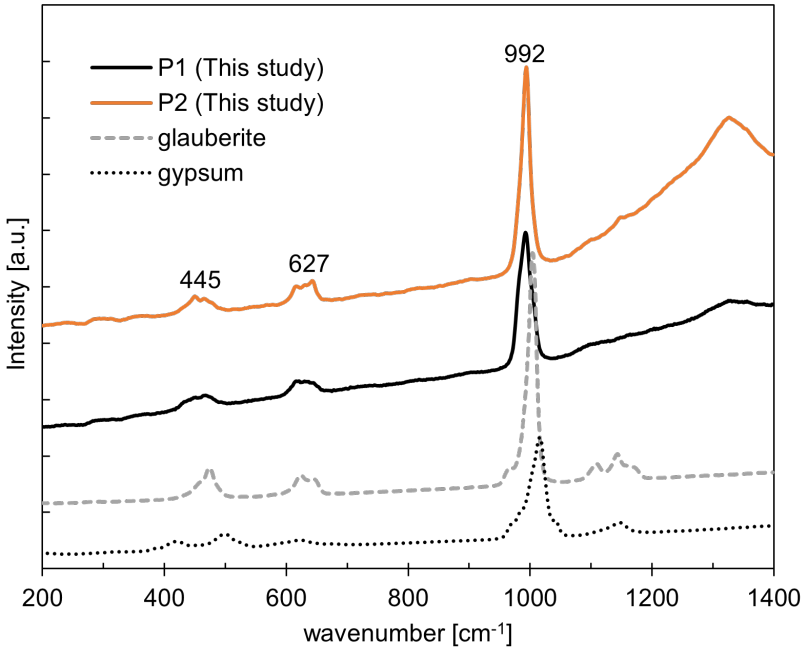


図 2.2-80　Na-Ca硫酸塩の顕微ラマンスペクトル
Na-Ca硫酸塩（2か所：P1およびP2）から得られたラマンスペクトルに加えて、glauberiteとgypsumの参考スペクトルとして、RRUFFデータベース上のR050350とR040029をそれぞれ引用した。ピーク上の数値は波数（cm^{-1}）を表す。

炭素鋼腐食試験で主な腐食生成物として siderite が形成したことは、先行研究と整合的であった（谷口ら、2010 など）。低酸素条件下における炭素鋼の腐食は、次式で示す水の還元反応とそれに伴う pH 上昇および水素ガスの発生で説明される。

$$Fe(0) \rightarrow Fe^{2+} + 2e^- \quad (1)$$

$$H_2O + 2e^- = 2OH^- + H_2(g)\uparrow \quad (2)$$

したがって、炭素鋼界面は局所的に pH が高くなるため、以下のような炭酸塩の沈殿反応が進みやすくなると考えられる。

$Ca^{2+} + HCO_3^- + OH^- = CaCO_3 + H_2O$ (3)

$xFe^{2+} + (1\text{-}x)Ca^{2+} + HCO_3^- + OH^- = Fe_xCa_{(1-x)}CO_3 + H_2O$ (4)

なお、今回の試験溶液（飽和 Na_2SO_4）には Ca は含まれていないものの、試験に用いたクニゲル V1 には calcite や dolomite などの炭酸塩鉱物が含まれている。さらに、Ochs et al.(1998)はクニゲル V1 中の可溶性不純物として Cl と SO_4 がそれぞれ 0.7 mmol/kg と 28 mmol/kg 含まれることを報告しており、これらの一部が $CaCl_2$ や $CaSO_4$ などとして存在していると考えられる。炭酸塩鉱物や可溶性の不純物の一部が溶解することで、炭素鋼と緩衝材との界面に Ca が供給されたと考えられる。また、Ca を固溶した siderite の形成は、ベントナイトに含まれる calcite の溶解・再沈殿がトリガーとなっていると指摘している先行研究（Martin et al., 2014; Schlegel et al., 2008）が、本研究では calcite が元々のクニゲル V1 と比較して、溶解しているか様子は明瞭には確認されなかった。

Matamoros-Veloza et al. (2020)は、$FeCO_3$ と $Fe_{0.66}Ca_{0.33}CO_3$ を比較し、Ca が siderite に固溶するにつれて結晶成長が阻害されることを報告している。Ca の固溶により、siderite の生成量が減少し、均一な腐食膜が炭素鋼表面に形成されず、炭素鋼の腐食速度が高くなることが考えられる。2022 年度のニアフィールド評価確証技術開発報告書(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)では、0.06 mol/L の Na_2SO_4 溶液を用いた試料の方が飽和 Na_2SO_4 溶液を用いた試料と比べて、炭素鋼との界面近傍での微小部蛍光 X 線分析による Ca のカウントが高いことから、より Ca が siderite 中に固溶しており、結果的に炭素鋼の腐食量が大きくなった可能性を指摘している。この点については、0.06 mol/L や 0.6 mol/L Na_2SO_4 を用いた腐食試験で形成した siderite の化学組成を、本研究と同様に分析・比較を行うことでより明確になるであろう。

Bharmoria et al.（2014）によると、Na_2SO_4 は 32.38 ˚C で溶解度の極大値（3.5 mol/L）を取り、それ以上の温度（32.38－70℃）では溶解度は緩やかに減少する。これを外挿すると、80℃における飽和 Na_2SO_4 溶液は凡そ 3.0 mol/L になる。一方、2022 年度に分析された、Na_2SO_4 溶液による浸漬試験（試料 A, B）では、より希薄な Na_2SO_4 溶液を用いており、それぞれ 0.06 と 0.6 mol/L である。ここで、Hill & Wills (1938)が報告している 25－75℃での $CaSO_4$-Na_2SO_4-H_2O 系における溶解度ダイアグラムを確認すると、75℃では凡そ 19 wt% Na_2SO_4（これは 1.65 mol/L に相当）を境にして、より高濃度側で glauberite が、低濃度側で anhydrite が形成することが見て取れる（図 2.2-34）。なお、Na_2SO_4 溶液が飽和に達し、thenardite が形成し始める 30 wt% Na_2SO_4 は、上記の Bharmoria et al. (2014)の 3.0 mol/L の条件に相当する。本研究で観察した試料の試験条件は、純粋な $CaSO_4$-Na_2SO_4-H_2O 系ではなく、ベントナイトの構成鉱物から溶出する各種イオンを含むより複雑な系ではあるものの、anhydrite－glauberite の共融点よりも高濃度側の Na_2SO_4 溶液を用いたことが glauberite の形成に繋がったと考えられる。一方、0.06 や 0.6 mol/L の溶液を用いた浸漬試験では anhydrite が形成することが予想される。

加えて、anhydrite や glauberite の析出によって、溶液中の $CaSO_4$ 濃度がコントロールされると仮定した場合、glauberite が析出する飽和に近い Na_2SO_4 溶液では 0.04 wt% $CaSO_4$ まで濃度が下がりうるのに対して、anhydrite が析出する側では約 0.07 wt% $CaSO_4$ が最小値となっており、anhydrite が析出する条件の方が溶液中の $CaSO_4$ 濃度が高くなりうる。したがって、同じ系内で形成する siderite に固溶する Ca の比率は、glauberite が析出するような高濃度 Na_2SO_4 の条件の方がより高くなる可能性がある。上述の通り、2022 年度のニアフィールド評価確証技術開発報告書では、より希薄な Na_2SO_4 を反応溶液に用いたほうが、より Ca が siderite に固溶した

可能性を指摘している。炭素鋼界面で形成する siderite の Fe/Ca 比をコントロールしているその他の要因の検証も求められるものの、少なくとも要因の一つとして、析出する硫酸塩の相の違いやその形成量が影響した可能性が考えられる。

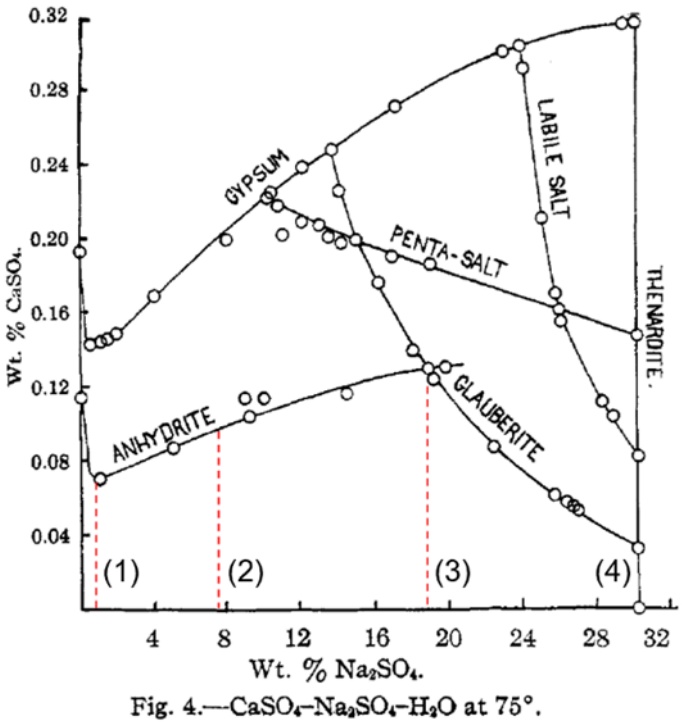


Fig. 4.—$CaSO_4$–Na_2SO_4–H_2O at 75°.

図 2.2-81　75℃における$CaSO_4$ - Na_2SO_4 - H_2O系の溶解度曲線
Hill & Wills (1938)を改変。縦破線 (1, 2, 3) および縦線 (4) はそれぞれ、0.06、0.6、1.65、3.0（飽和）mol/L のNa_2SO_4濃度に相当する条件を示す。

2)　セメンテーション試料作製に関する実験的検討

ベントナイトに含まれる構成鉱物の一部が溶解し、間隙中に二次鉱物が沈殿することで生じるセメンテーションを再現するため、ベントナイト供試体への通水試験及び浸漬試験を行った。

2020 年度および 2021 年度は、緩衝材に高 Mg 濃度溶液を通水することにより、シリカ粒子の溶解により供給される Si との反応でマグネシウムシリケート水和物が生成するような試験を実施したが、顕著な沈殿物の生成や空隙の充填は確認されなかった(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2020; 2021)。2022 年度および今年度は、鉄水酸化物およびシリカによるセメンテーションを模擬する実験系を検討した(日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2022)。

鉄水酸化物によるセメンテーションは、鉄含有鉱物の溶解やオーバーパックの腐食によって放出された鉄イオンが鉄水酸化物や鉄オキシ水酸化物等として沈殿することで生じると考えられており（Pusch, 2001）、実規模試験（Pusch et al., 2007; Pusch et al., 2010）や 8 年間の長期室内試験（Kumpulainen et al., 2010）などでも報告されている。なお、地層処分の対象となる地下 300 m 以深では非酸化的環境が想定されるものの、処分場の掘削から埋め戻しまでの期間においては酸化的環境となることから、3 価鉄の挙動にも着目する必要がある。

一方、シリカによるセメンテーションについては、特に高温の熱履歴によって生じる可能性が指摘されている（Wersin et al., 2007）。スウェーデンの Kinnekule 鉱床などの天然ベントナイト鉱床を対象としたナチュラルアナログの事例（Pusch and Madsen, 1995）では、セメンテーションによる膨潤圧の低下や透水係数の増加が報告されている。

本研究では後述の手法で塩化鉄（III）（$FeCl_3$）溶液およびメタケイ酸ナトリウム（Na_2SiO_3）溶液への浸漬・通水によるセメンテーションの模擬試験を実施した。なお、試験装置の制約上、通水試験ではメタケイ酸ナトリウム水溶液を用いた試験のみを取り扱った。

①　試験手法

本試験ではベントナイト試料として「クニゲル V1」（クニミネ工業株式会社）を用いた。クニゲル V1 の鉱物組成については、伊藤ら（1994）でスメクタイト 46-49 wt%、石英・玉髄 29-38 wt%、斜長石 2.7-5 wt%、方解石 2.1-2.6 wt%、苦灰石 2-2.8 wt%、方沸石 3-3.5 wt%、黄鉄鉱 0.5-0.7 wt%と報告されている。また、スメクタイトは主に Na 型モンモリロナイトである。

ベントナイト試料を乾燥密度 0.6 Mg/m^3 となるようにアクリル樹脂製のカラム（内径 20 mm・長さ 30 mm）に充填した（図 2.2-35）。カラムの上下には、試料を流出させないために 100 メッシュのステンレスフィルターおよび 0.20 μm 孔径のメンブレンフィルターを設置した。本試験では、ベントナイトの乾燥密度を実際に施工が検討されている値（~1.6 Mg/m^3）よりも低く設定し、通水を容易にすることで短期間での反応の進行を観察した。供試体(ベントナイト試料を詰めたカラム)は試験前にイオン交換水に浸漬し、真空ポンプで約 2 週間脱気させることで含水飽和させた。

浸漬試験には、塩化鉄 (III) 水溶液およびメタケイ酸ナトリウム水溶液を用いた。塩化鉄 (III) 水溶液は、塩化鉄（III）六水和物を用いて pH 2.26（25˚C）、10.4 mmol/L に調整した。メタケイ酸ナトリウム水溶液は、メタケイ酸ナトリウムを用いて 1.16 mol/L Na_2SiO_3 水溶液を作成し、HCl（35% 塩酸）の添加により pH を 11.5（25˚C）に調整したものを用いた。両試験ともに、飽和濃度に近い水溶液にベントナイト試料を浸漬し、ベントナイト中の反応により間隙水中の pH が上昇・低下することにより、間隙水中から沈殿物が析出することを想定した試験である(図 2.2-36a, b)。各溶液にカラム供試体を浸漬させ、70˚C の恒温炉で試験を行った。$FeCl_3$ 浸漬試験は 123 日間、Na_2SiO_3 浸漬試験は 66 日間の後に試料を回収した。

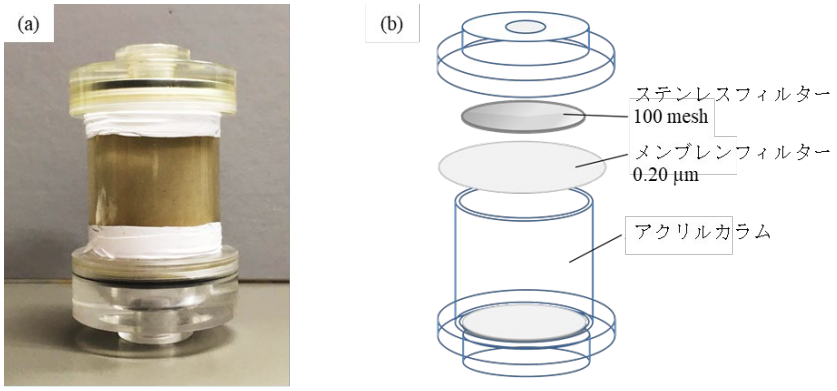


図 2.2-82　実験に使用したベントナイト充填カラム(a)とカラムの内部構造(b)

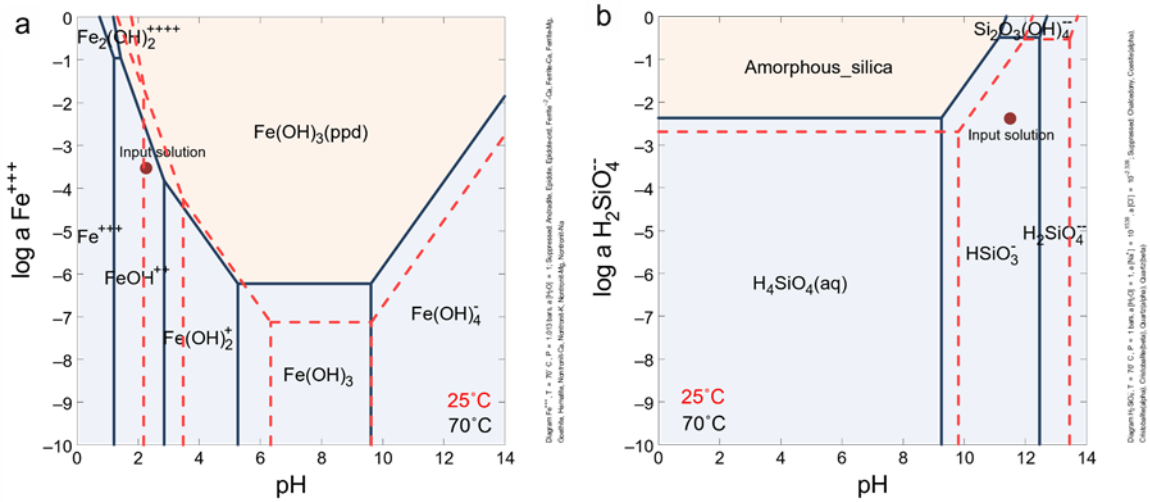


図 2.2-83　(a) $Fe(OH)_3$および (b) 非晶質シリカの溶解度曲線

② 分析手法

試験溶液については、浸漬試験の開始前および試験中に溶液を分取し、pH および主要溶存元素濃度の測定を行った。pH 測定では、堀場製作所製の pH 電極（HORIBA, 9625-10D）および pH メータ（LAQUAct D-74）を用いた。pH 校正には、堀場製作所製 pH7 と pH9 標準液を用いた。主要溶存元素の濃度は、分取した溶液を超純水で 10 倍に希釈し 1 vol%の硝酸（硝酸 1.38 特級，関東化学）を加え、誘導結合プラズマ発光分析装置（ICP-AES；ThermoFisher, iCAPPRO Qtegra）を用いて測定を行った。他元素混合標準液（ICP multi-element standard solution IV, Merck KGaA）およびシリコン標準液(Silicon Standard Solution, 富士フィルム和光純薬）を用いて、検量線法により溶存元素濃度を定量した。

一方、回収した固相試料については、試料加工後に SEM 観察及び XRD 分析を行った。図 2.2-37 に示すように円柱状の試料を底面に平行な面で 3 分割し、$FeCl_3$（Na_2SiO_3）浸漬試験では外側、内側をそれぞれ Fe1（Si1）、Fe2（Si2）とした。一方、通水試験では通水方向の上流側を Flow1 とし、中流、下流側の試料を Flow2、Flow3 とした。

分割後の試料の一部を用いて、北海道大学の理学部薄片技術室にて薄片試料を作製して分析に供した。薄片試料は、試料の吸水性や脆弱性を考慮して、水や油を使用しない乾式研磨法（大和

田ら, 2013）によって作製した。SEM 観察には JSM-IT200（JEOL）を用い、加速電圧 15 kV にて二次電子像・反射電子像の撮影及びエネルギー分散型 X 線分光（EDS）による組成分析を実施した。

また、分割後試料の一部をメノウ乳鉢で粉砕し、粉末 XRD 分析に供した。粉末 XRD 分析は Co 管球を有する X 線回折装置（MiniFlex, Rigaku）を用いて、管電圧 40 kV、管電流 15 mA、測定範囲 2θ = 2-70°、スキャンステップ 0.02°、スキャンスピード 1°/min の条件で測定した。

さらに、モンモリロナイトの膨潤挙動を確かめるため、定方位試料を用いて、大気下および相対湿度制御下での XRD 分析を別途行った。定方位試料は、遠心分離機による水簸で得た粒径 0.2 - 2 μm の粉末試料 10 mg をイオン交換水 300 μL に分散し、懸濁液をスライドガラスに滴下・乾燥させて作製した。測定には Cu 管球を有する X 線回折装置（RINT-2100, Rigaku）を用い、管電圧 30 kV、管電流 20 mA、測定範囲 2θ = 2 - 40°、スキャンステップ 0.02°、スキャンスピード 1°/min で測定した。相対湿度制御には精密湿度供給装置（SRG-1R, 神栄テクノロジー株式会社）を用い、ゴニオメーター内を相対湿度（RH）0, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80 %に制御して測定を行った。RH 0 %での測定は乾燥空気をゴニオメーターに当てて半日（12 時間以上）後、それ以外の RH での測定は湿度制御した空気を当てて 30 分後に行った。

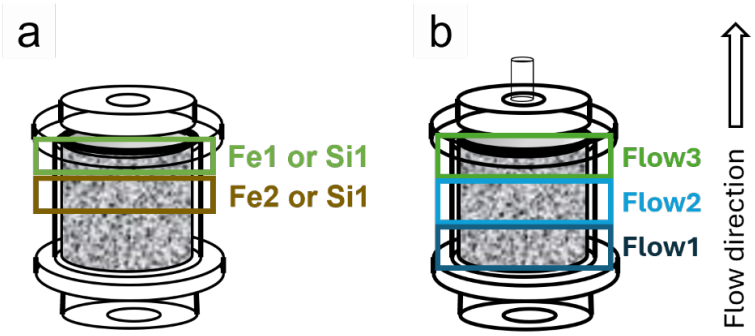


図 2.2-84　試験後のカラム試料の分割方法
(a) 浸漬試験、(b) 通水試験

③　結果と考察

(a)　塩化鉄水溶液を用いた浸漬試験

123 日間浸漬試験後、カラム外側の溶液中には赤褐色の沈殿物の形成が確認された。この懸濁液のろ液の pH 及び主要溶存元素濃度を表 2.2-66 に示す。初期溶液と比べると、37 日後の溶液の pH は低下しているが、その後時間経過とともに pH の僅かな上昇が確認された。Fe は初期溶液から 37 日後までの間で濃度が顕著に低下しており、カラム外に生成した沈殿物の寄与が考えられる。その後の Fe 濃度は時間経過と共に徐々に増加する傾向が見られた。Si や Mg、Ca、Na、Al は次第に増加する傾向が見られ、ベントナイトからの溶出を示していると考えられる。

$FeCl_3$溶液による浸漬試験後試料について、不定方位粉末 X 線回折分析の結果を図 2.2-38 に示す。二次生成鉱物は明瞭には確認できず、カルサイトのピークの減少のみが確認された。また、カラム外部の溶液中に確認された沈殿物に関して、不定方位粉末 X 線回折プロファイルを図 2.2-39 に示す。この結果から沈殿物は主に hematite と akaganeite、微量の $FeCl_3$ であると考えられる。

さらに、層間陽イオン種を調べるために、相対湿度制御下でのモンモリロナイトの底面間隔の

変化について分析を行った（図 2.2-40）。浸漬試験後の試料は Na 型のクニゲル V1 の挙動とは異なり、層間に Ca を有するモンモリロナイトと類似した特徴を示した。また、カラムの外側と内側（Fe1 と Fe2）の間で膨潤挙動に大きな変化は見られなかった。Gaines & Thomas (1953) に則したイオン交換反応での選択定数 K_{GT} は以下のように記述される。

$$K_{GT} = \frac{X_{Ca} \cdot \{Na^{+}(aq)\}^{2}}{(X_{Na})^{2} \cdot \{Ca^{2+}(aq)\}}$$

ここで、X_{Ca} や X_{Na} は粘土中の Ca^{2+}や Na^{+}の存在比を表し、$\{Na^{+}(aq)\}$や$\{Ca^{2+}(aq)\}$は外部の溶液中の活量を表す。Hedström & Karnland (2011)は、乾燥密度 1.35 Mg/m³ 以下の圧縮ベントナイト中におけるモンモリロナイトへの Na に対する Ca の選択係数 $K_{(Na \rightarrow Ca)}$ を 5.1 – 5.2 と報告している。本研究の $FeCl_3$ 浸漬試験中の溶液の組成（表 2.2-66）から拡張デバイ・ヒュッケル式に基づいて活量を計算し、$K_{(Na \rightarrow Ca)}$を 5 と仮定して計算すると、37 日後で X_{Ca} = 0.82、65 日後で 0.88、93 日後で 0.90、123 日後で 0.48 となる。123 日後の溶液では Na が顕著に高いために X_{Ca} が低い値になっているものの、試験期間を通して Ca の方が Na よりも層間陽イオンとして支配的だったと考えられる。こうした Ca の供給源としては、反応溶液に pH の低い溶液を使ったことで溶解したクニゲル V1 中の炭酸塩鉱物が候補として考えられる。

表 2.2-66　$FeCl_3$浸漬試験中の溶液組成の変化

mmol/L	pH	Fe	Si	Mg	K	Ca	Na	Al
Initial solution	2.26	10.40						
37 days	1.57	0.51	1.62	0.41	0.73	2.02	15.53	0.06
65 days	1.74	0.50	2.43	0.64	0 26	3.31	13.21	0.18
93 days	1.70	0.64	3.67	0.88	0 29	4.32	12.84	0.25
123 days	2.13	0.71	3.02	1.01	0 30	4.69	65.97	0.29

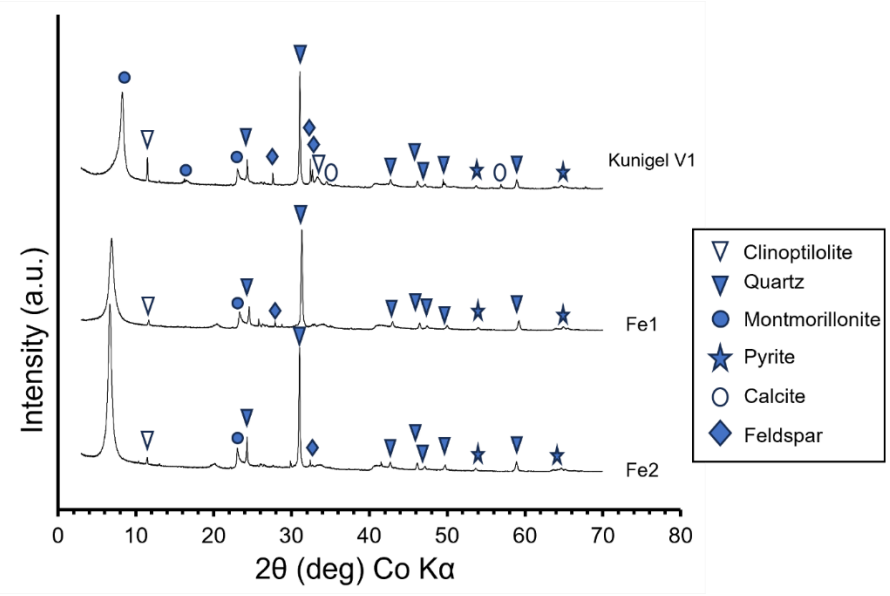


図 2.2-85　$FeCl_3$浸漬試験前後でのベントナイトのX線回折プロファイル

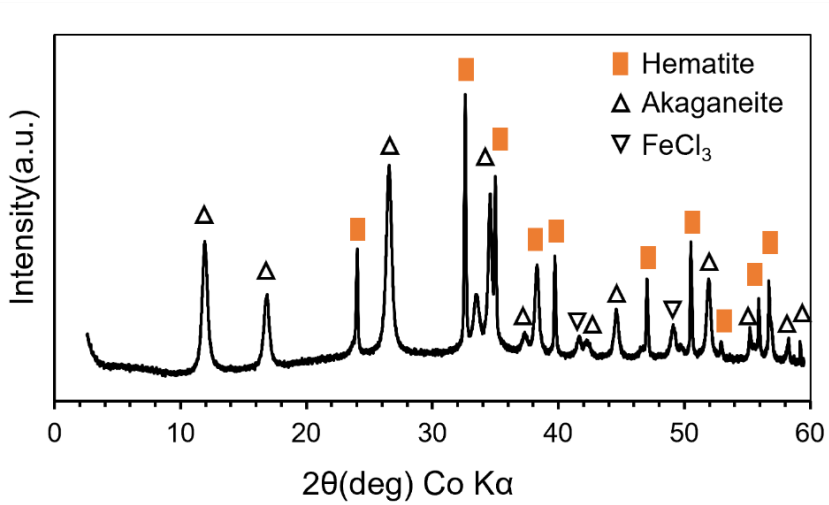


図 2.2-86　反応溶液中の沈殿物のX線回折プロファイル

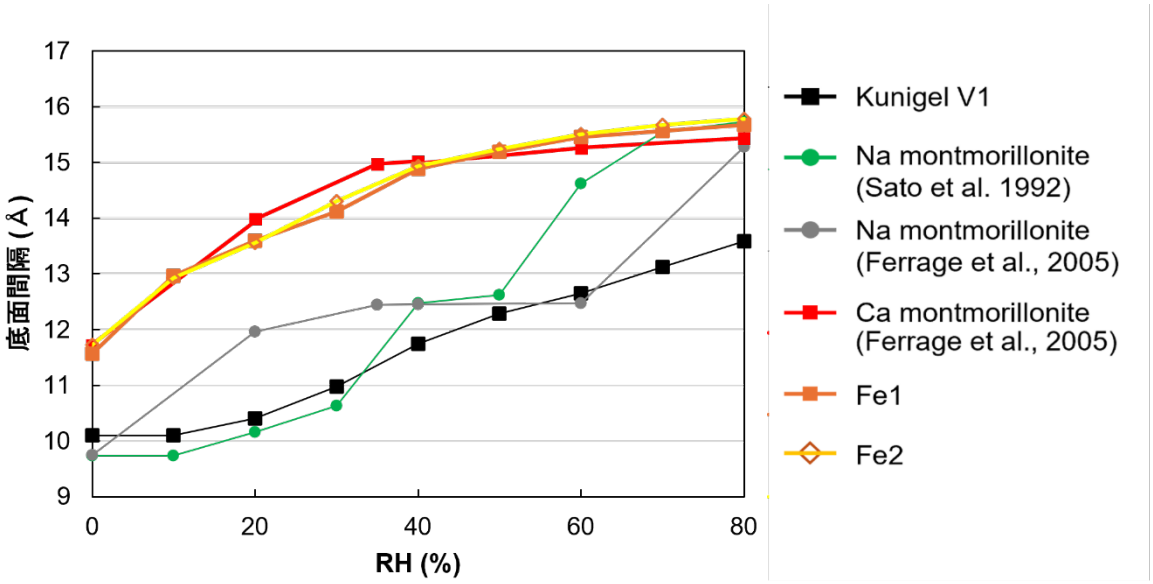


図 2.2-87　異なる相対湿度下でのモンモリロナイトの層間距離（$FeCl_3$浸漬試験）

浸漬試験前後の試料の SEM 観察結果を図 2.2-41 に示す。これらを比較した結果からは顕著な二次鉱物の生成は見受けられなかったが、Fe1 中に微量ながら 2 μm ほどのサイズの二次鉱物が観察された（図 2.2-41d）。SEM-EDS の結果から Fe と Si を含む鉱物であり（図 2.2-41e）、ferrihydrite といった低結晶質な鉄オキシ水酸化物の可能性が考えられる。

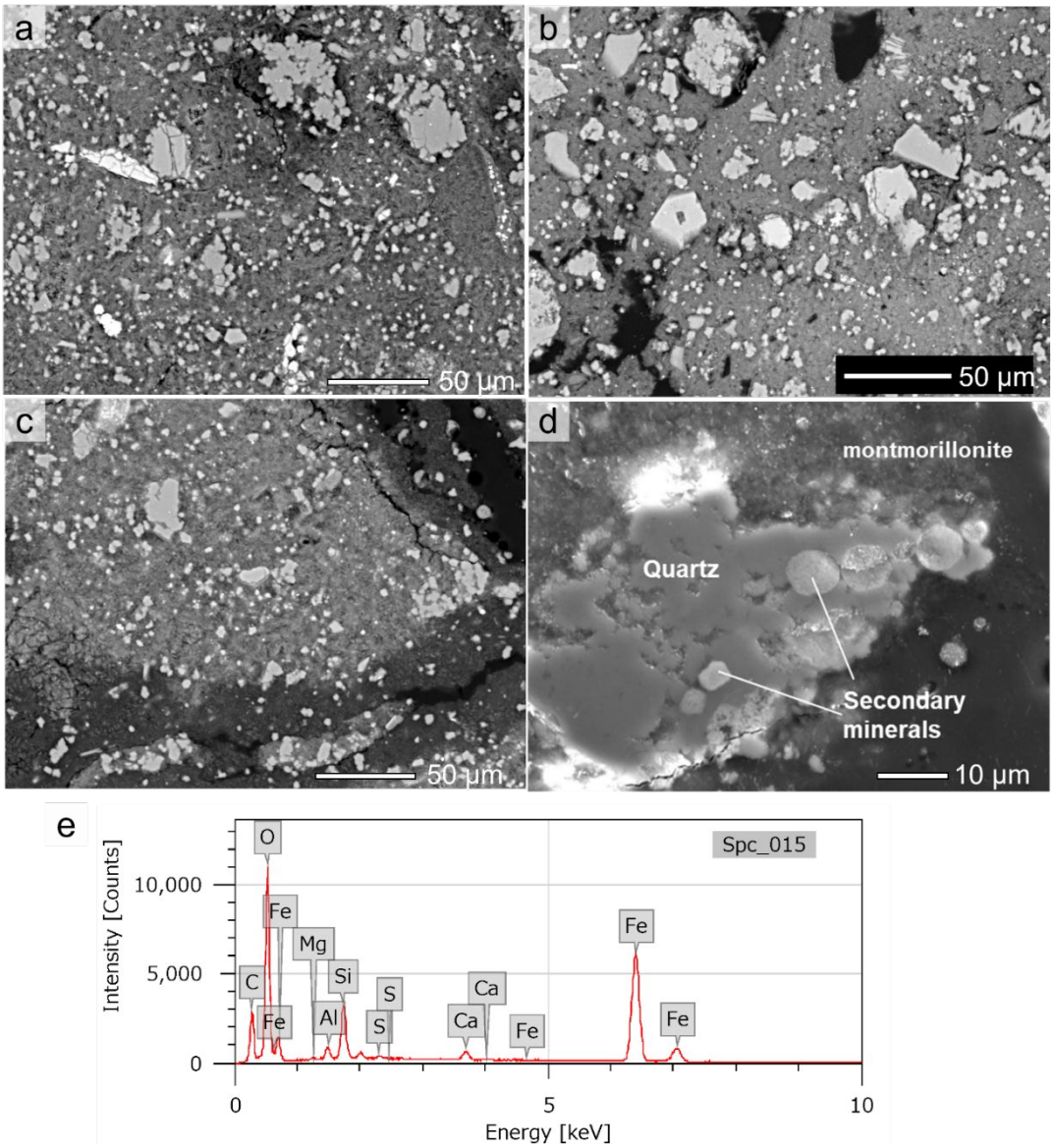


図 2.2-88　浸漬試験前後でのSEM観察像

(b)　珪酸ナトリウム水溶液を用いた浸漬試験

66 日間の浸漬試験後にカラム試料を回収した。$FeCl_3$ 浸漬試験とは異なり、カラムの外部での沈殿物は確認されなかった。Na_2SiO_3 溶液による浸漬試験における溶液の pH 及び主要溶存元素濃度の結果を表 2.2-67 に示す。初期溶液と比べて、Si と Na 濃度の減少、K と Al 濃度の上昇が確認される。

Na_2SiO_3 溶液による浸漬試験における供試体の不定方位粉末 X 線回折プロファイルを図 2.2-42 に示す。クニゲル V1 と比べて、長石のピークの減少が認められる。一方、二次鉱物としては halite（NaCl）以外には確認されなかった。この halite については、Na_2SiO_3 溶液の pH 調整に HCl を用いたことで加えられた塩化物イオンが、試料乾燥時に沈殿したものだと想定される。

さらに、相対湿度制御下でのモンモリロナイトの底面間隔の変化を検証した（図 2.2-43）。浸漬試験後の試料は Na 型のクニゲル V1 の挙動と類似した挙動を示したことから、層間陽イオンは Na が支配的のままだと考えられる。また、カラムの外側と内側（Si1 と Si2）の間で膨潤挙動

に大きな変化は見られなかった。

表 2.2-67　Na_2SiO_3浸漬試験中の溶液組成の変化

mmol/L	pH	Fe	Si	Mg	K	Ca	Na	Al
Initial solution	11.5	-	1.16×10^{3}	-	-	-	2.33×10^{3}	-
32 days	11.7	0.0147	738.0	6.55×10^{-4}	0.374	0.0176	2.01×10^{3}	0.129
66 days	11.7	0.0148	557.0	6.69×10^{-4}	0.590	0.0188	1.98×10^{3}	0.163

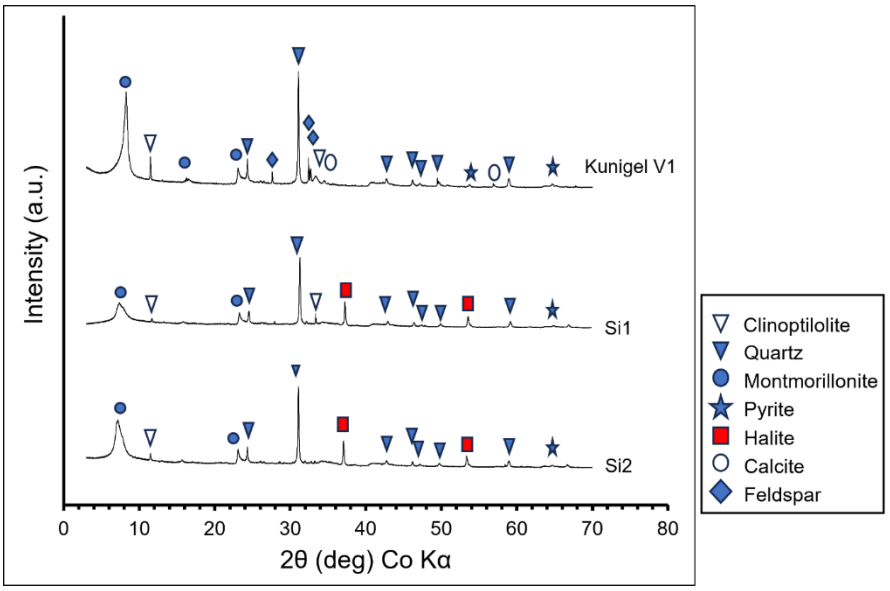


図 2.2-89　Na_2SiO_3浸漬試験前後でのベントナイトのX線回折プロファイル

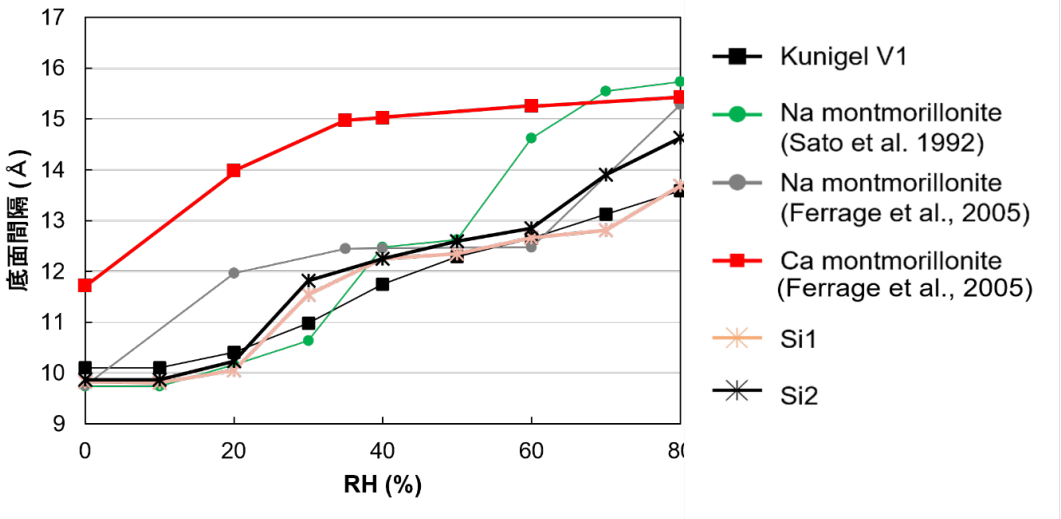


図 2.2-90　異なる相対湿度下でのモンモリロナイトの層間距離（Na_2SiO_3浸漬試験）

Na_2SiO_3 浸漬試験後の試料の SEM 観察では、montmorillonite のマトリクス中や長石類の縁辺部に針状の二次鉱物が観察された（図 2.2-44）。Montmorillonite と細かく混在していることから単体の化学組成は得られなかったものの、SEM-EDS の結果は Na と Si を主成分とする相で

あることを示しており、以下、便宜上”Na-silicate”と呼称する。上記の粉末 X 線回折プロファイル上では認められないことから非晶質であることが想定される。なお、次節の通水試験においても同様の Na-silicate が形成しており、より詳細なキャラクタリゼーションについては次節にて実施した。

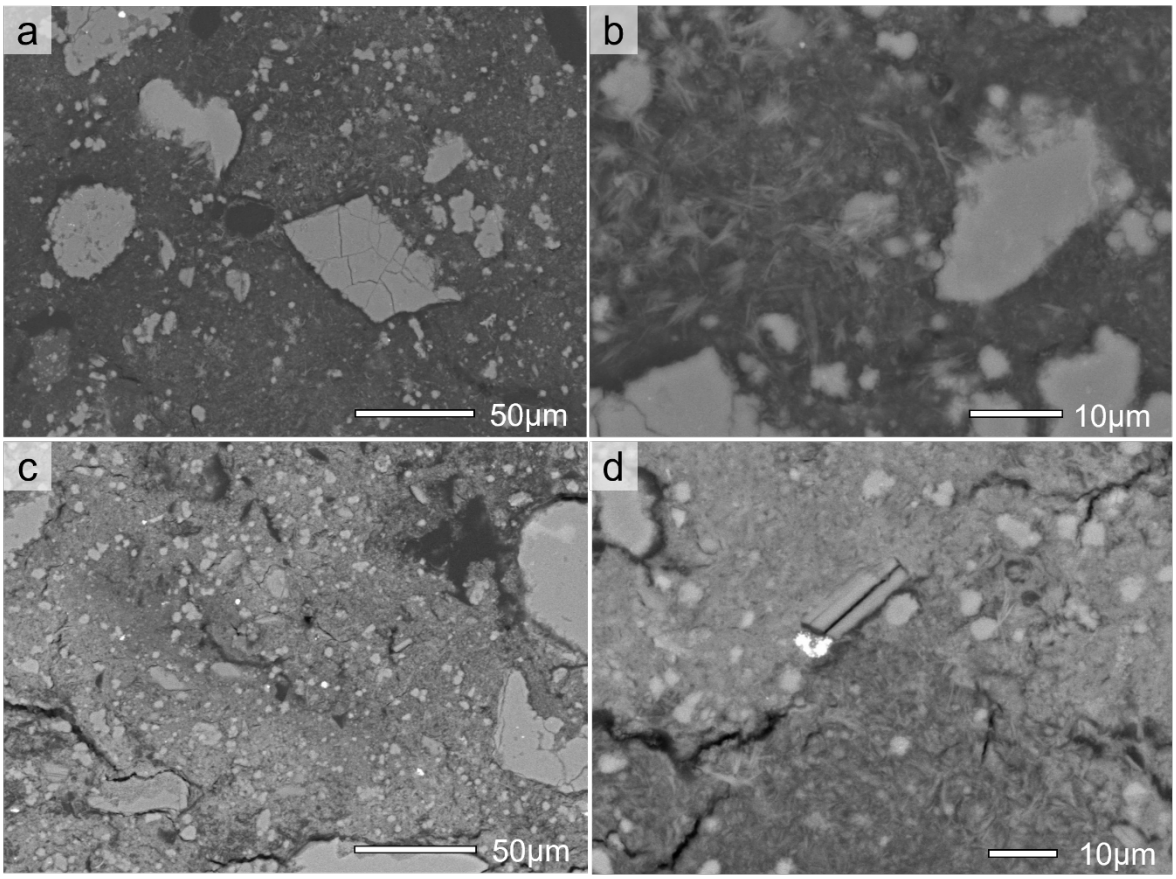


図 2.2-91　浸漬試験後のSEM観察像
(a, b) カラム外側（Si1）の試料。(c, d) カラム内側（Si2）の試料

(c)　珪酸ナトリウム水溶液を用いた通水試験

Na_2SiO_3溶液による通水試験における溶液の pH 及び主要溶存元素濃度の結果を表 2.2-68 に示す。概ね、Na_2SiO_3溶液を用いた浸漬試験と似た傾向を示す。Si, Na 濃度は初期溶液と比べて 4 日後において低い値を示したが、時間経過とともにやや増加した値で横ばいに推移した。K 濃度に関しては、4 日目に比較的高い溶出が確認されたが、その後の溶出濃度の減少も確認された。Fe や Mg については試験期間を通じて、ほとんど変化が無かった。

また、本実験においては透水係数 k（m/s）を次式で示されるダルシ―則により評価した：

$$\frac{Q}{A} = k \times \frac{\Delta P}{\Delta L}$$

ここで、Q は流量（m^3/s）、A はカラムの断面積（m^2）、ΔP は水頭差（m）、ΔL は試料の通水方向における長さ（m）である。流量 Q は、アウトプット溶液の重量を密度 1 g/cm^3 と仮定して通水した体積に換算し、通水時間で除することで計算した。ここで、カラムからアウトプット溶液を回収しているボトルまでを繋ぐチューブ内の体積は考慮していない。図 2.2-92 に算出した

透水係数の結果を示す。4 日目から 5 日目にかけて透水係数の上昇が確認されたが、その後 19 日目にかけて次第に低下する様子が確認された。

表 2.2-68　Na_2SiO_3通水試験中のアウトプット溶液組成の変化

mmol/L	pH	Fe	Si	Mg	K	Ca	Na	Al
Input solution	11.5		11.6×10^{2}				2.3×10^{3}	
4 days	11.9	7.5×10^{-3}	3.3×10^{2}	3.63×10^{-3}	1.82	0.104	1.40×10^{3}	0.38
5 days	12.0	8.5×10^{-3}	5.5×10^{2}	8.35×10^{-3}	1.32	0.075	2.5×10^{3}	0.26
7 days	12.1	9.1×10^{-3}	5.9×10^{2}	8.17×10^{-3}	1.09	0.070	1.75×10^{3}	0.23
13 days	12.1	9.9×10^{-3}	6.0×10^{2}	7.92×10^{-3}	0.78	0.061	1.82×10^{3}	0.23
15 days	12.1	10.4×10^{-3}	6.7×10^{2}	7.59×10^{-3}	0.68	0.052	1.77×10^{3}	0.25
19 days	12.0	10.5×10^{-3}	6.0×10^{2}	5.27×10^{-3}	0.70	0.043	1.77×10^{3}	0.35

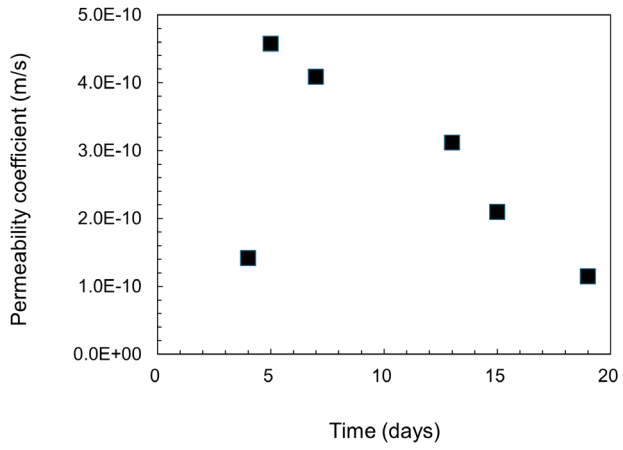


図 2.2-92　通水試験中の透水係数の変化

Na_2SiO_3溶液による通水試験後の不定方位粉末 X 線回折プロファイは、概ね浸漬試験と同様の結果となった（図 2.2-46）。クニゲル V1 と比べて、長石および calcite のピークの減少が認められる。一方、二次鉱物としては halite（NaCl）以外には確認されなかった。この halite については、Na_2SiO_3溶液の pH 調整に HCl を用いたことで加えられた塩化物イオンが、試料乾燥時に沈殿したものと想定される。また、相対湿度制御下でのモンモリロナイトの底面間隔の変化を検証すると、こちらも浸漬試験と同様の結果となり（図 2.2-47）、Na 型のクニゲル V1 の挙動と類似した挙動を示した。層間陽イオンは Na が支配的のままだと考えられる。また、カラムの上流側から下流側（Flow1 から Flow2、Flow3）の間で、膨潤挙動に大きな変化は見られなかった。

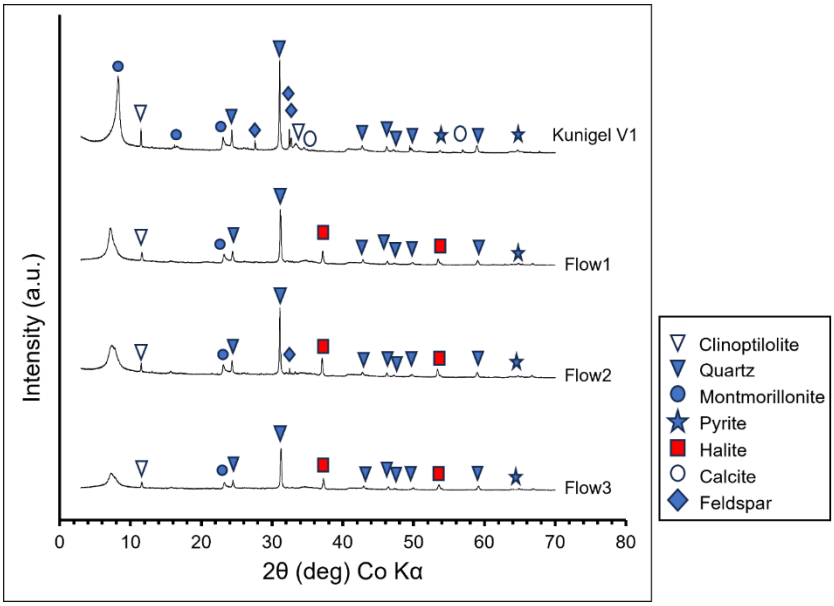


図 2.2-93　Na_2SiO_3通水試験前後でのベントナイトのX線回折プロファイル

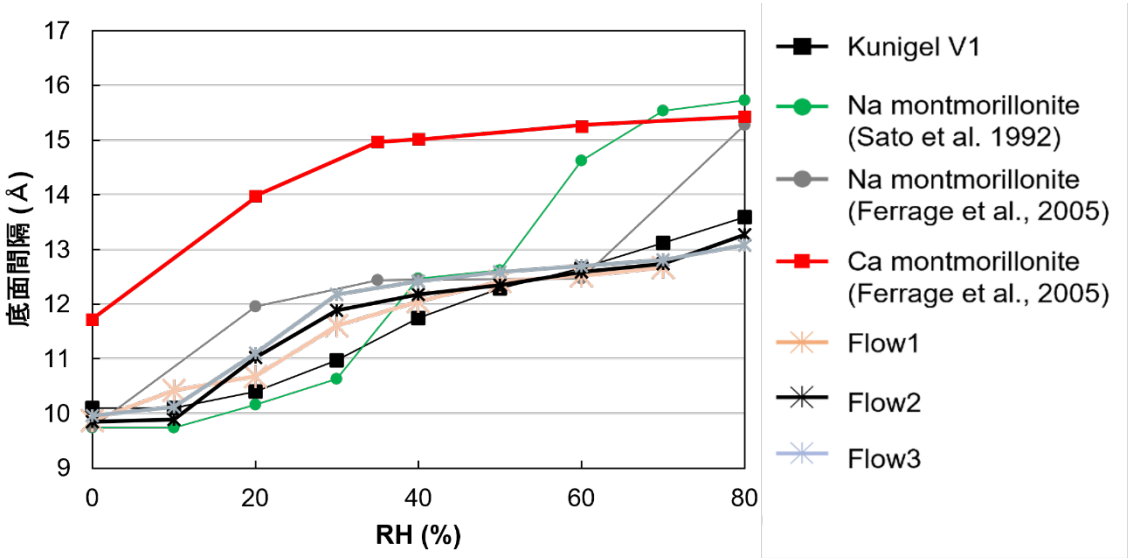


図 2.2-94　異なる相対湿度下でのモンモリロナイトの層間距離（Na_2SiO_3通水試験）

次に、通水試験後の試料を SEM によって観察したところ図 2.2-48、Flow1 の試料のみ針状の二次鉱物が顕著に認められた。これは Na2SiO3 浸漬試験後の試料でも観察された Na-silicate と類似した非晶質物質だと考えられる。一方、下流側の試料（Flow2 と Flow3）では、その生成が確認されなかった。なお、Flow2 と Flowe3 では montmorillonite のマトリクスの空隙に halite の形成が顕著に見られたが、これは試料乾燥時に形成したものと考えられる。また、ベントナイトの Na-silicate の生成量やベントナイトの鉱物組成の変化を調べるために、ポイントカウンティングによる各鉱物の面積割合を算出した（表 2.2-69）。Flow1 では Na-silicate が全体の 28.76%の面積を占めるほど、顕著に析出していることが分かる。Na-silicate の増加に伴って、montmorillonite や quartz、calcite の比率は減少した。一方、Flow2 や Flow3 では halite の比率が顕著に増加していることが分かる。

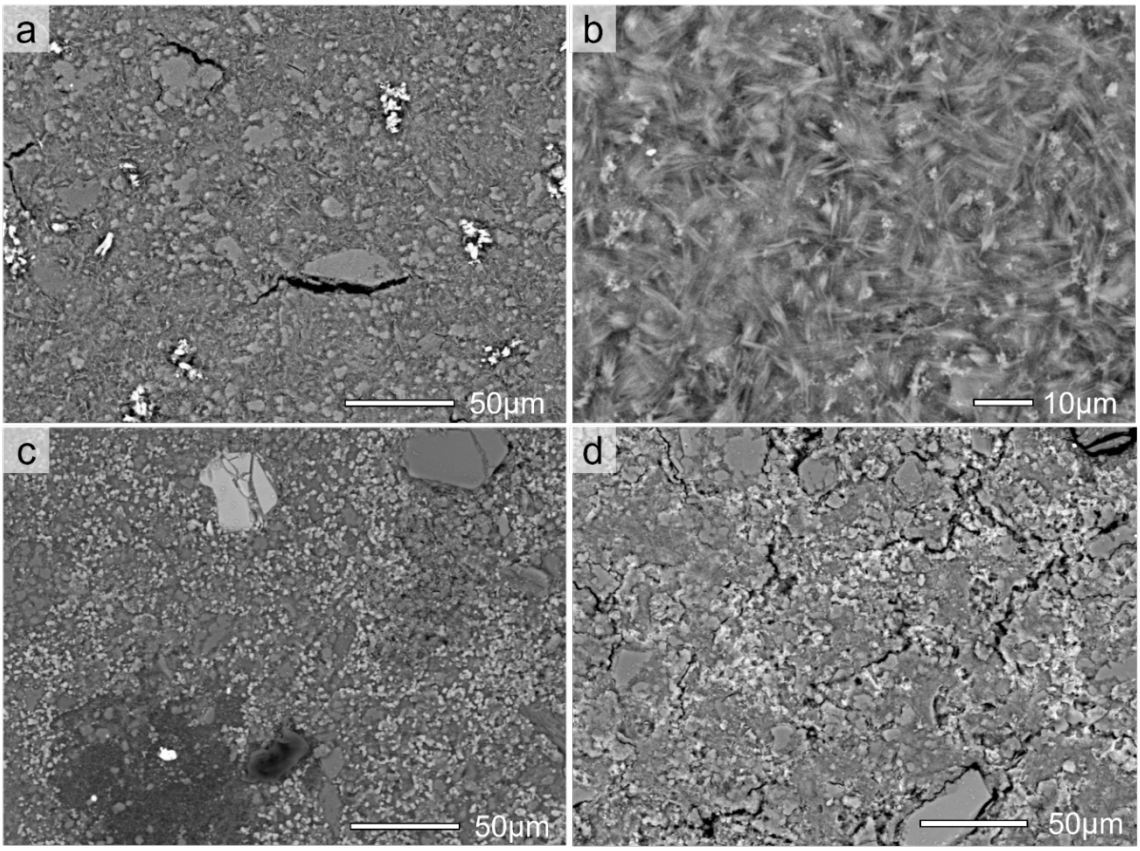


図 2.2-95　通水試験後のベントナイトのSEM観察像
(a, b) カラム上流側の試料（Flow1）、(c) Flow2、(d) Flow3

表 2.2-69　各鉱物の面積割合

(area %)	Kunigel V1	Flow1	Flow2	Flow3
Montmorillonite	64.94	49.57	55.42	55.66
Na-silicate	0.00	28.76	0.00	0.00
Quartz	31.82	18.56	22.99	31.40
Feldspar	2.70	3.00	1.49	1.83
Pyrite	0.43	0.11	0.00	0.10
Calcite	0.11	0.00	2.09	0.00
Halite	0.00	0.00	18.01	11.01

非常に微細且つ montmorillonite などと細かく混在している Na-silicate の特徴を明らかにするため、FIB-SEM による試料表面の切り出し・薄膜化を行った上で、TEM と STEM による局所分析を行った。FIB-SEM で撮影した二次電子像上では幅 200 nm 程度、長さが最大 10 μm に達する細長い針状結晶が石英などの鉱物粒子の表面や周囲の亀裂内部に析出している様子が確認

出来る（図 2.2-49）。石英粒子と周囲の montmorillonite のマトリクスの境界付近にて、Na-silicate を含むように薄膜を作製した（図 2.2-50）。

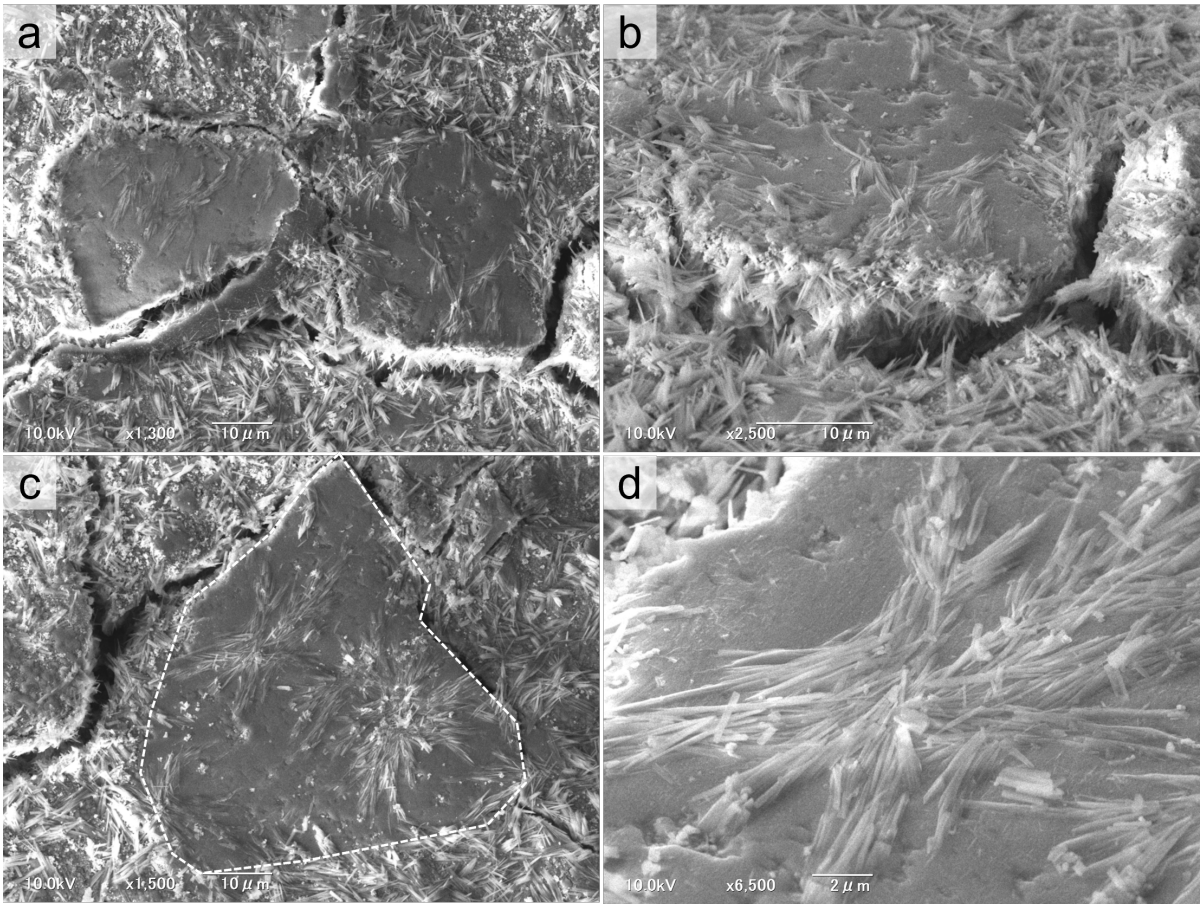


図 2.2-96　Na_2SiO_3通水試験による二次鉱物の産状
FIB-SEMの電子ビームにて薄片上を撮影した二次電子像。左列（a, c）は試料の傾斜0°、右列（b, d）は53°にてそれぞれ撮影した。

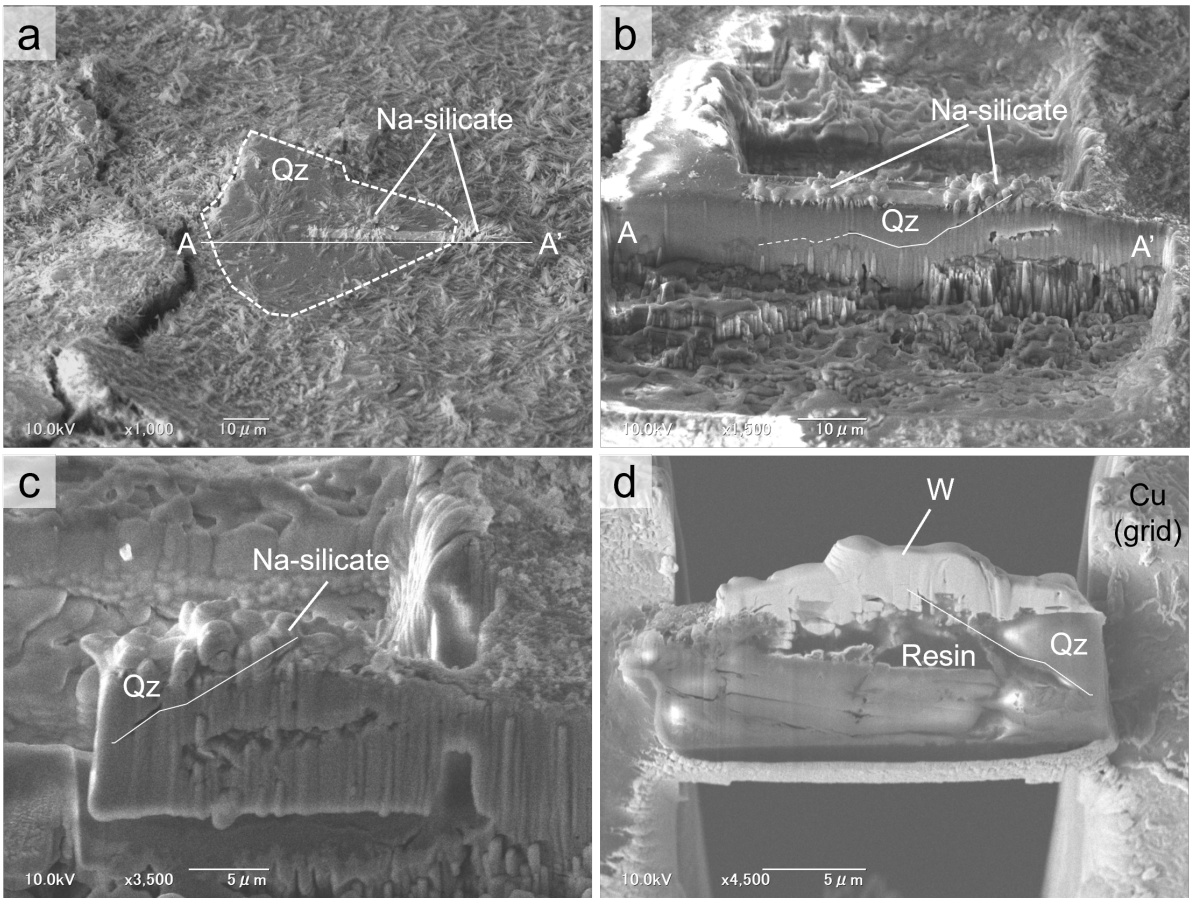


図 2.2-97　FIBでの加工過程

(a) 点線は石英（Qz）の粒界。(b) 加工したA-A’断面。(c) Na-silicateを含む石英-マトリクスの粒界付近をマイクロサンプリング。(d) (S)TEM観察用のCu製グリッドに貼り付けた試料。

FIB-SEM で作製した薄膜の全体像を STEM で撮影した様子を図 2.2-51 に示す。薄膜中央には図 2.2-50c に見られた亀裂を埋める形で樹脂が浸透しており、その上部に montmorillonite と周囲の Na-silicate、下部に試験中に変質を被ったと考えられる clinoptilolite と周囲の Na-silicate が分布している。前者の範囲を TEM で観察したところ、層状組織を示す montmorillonite の上部に 100 - 500 μm 程度の楕円状の粒子が分布している様子が確認された（図 2.2-51）。この楕円状の粒子は Al と O を主体とする化学組成と電子回折パターンから corundum（Al_2O_3）であり、薄片作製時に用いた研磨剤が混入したものと考えられる。この corundum の周囲には、粒子形状が明瞭でないものの、montmorillonite とは異なる非晶質様の領域が混在していた。これが Na-silicate に相当する可能性が高いが、TEM-EDS では corundum と分離しての化学組成分析が困難であった。そこで、STEM-EDS による元素マッピングを同範囲で実施した（図 2.2-52）。元素分布からは、corundum 粒子の隙間に Si と少量の Na, Al を含み、且つ montmorillonite に含まれる Mg や Fe を含まない相が存在していることが分かった。Na や Al の濃度はバラつきが大きいが、corundum と干渉しない部分での化学組成は、Na/Si 比が凡そ 0.04 で、Si/Al 比は凡そ 7.68 であった。

同様に、clinoptilolite と思われる粒子表面に形成している Na-silicate の周辺についても元素マッピングを行った（図 2.2-52）。こちらの Na-silicate では Na のピークが明瞭に確認できる他、Cl や FIB 加工に用いた W や Ga などの明瞭なピークが確認された。図 2.2-52 で示した範囲の

Na-silicate は Na/Si が凡そ 1.13 で、Si/Al 比が凡そ 5.99 であった。Na の定量値については電子線の照射による拡散の影響が大きいことを考慮しなければならないが、図 2.2 24 の範囲の Na-silicate の組成との差が大きい。このようなバラつきのある化学組成をもつ性質は、Na と Si に富むアルカリ条件で生成される非晶質物質である N-A-S-H でも見られる特徴（Fugazzotto et al. 2023）と解釈することも出来る。一方、表面に Na-silicate を伴った粒子は clinoptilolite が通水試験中に変質したものと考えられる。TEM での制限視野電子回折では非晶質の回折像しか得られず、かつ Na が著しく少なく、Si/Al 比も文献値の 4.2 - 4.3 程度（Hemingway & Robie, 1984; Johson et al., 1991）よりも低い 3.78 程度を示すことから相同定に難があるが、その長柱状の粒子形態からクニゲル V1 の構成鉱物のうち、clinoptilolite であった可能性が最も高い。図 2.2-51 の下段の HAADF 像では、この粒子中の亀裂周辺にややコントラストの明るい部分が広がっており、Na や Al が一部溶出したことを反映している。図 2.2-52 の元素マッピングを行った範囲でも、Na-silicate を伴う表面に多数の微細な亀裂が生じている様子が確認され、こうした部分から溶出した clinoptilolite の構成元素（Na, Al, Si）が Na-silicate の形成につながっていることが予想される。

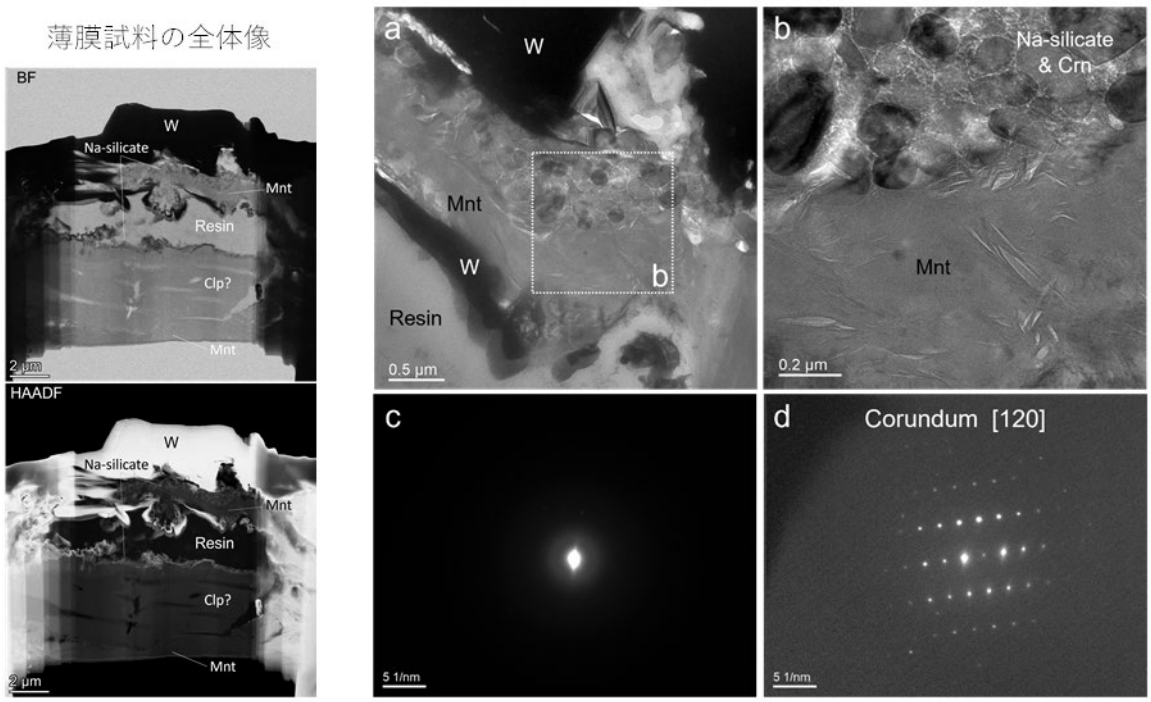


図 2.2-98　薄膜の全体像(左)および観察結果(右)
左側の全体像については、上段：明視野像、下段：HAADF像
右側の観察結果については、(a, b) TEMの明視野像。Montmorillonite（Mnt）とNa-silicateおよびcorundum（Crn, 研磨剤）が接する部分。(c, d) Montmorilloniteとcorundumから得られた制限視野電子回折像。

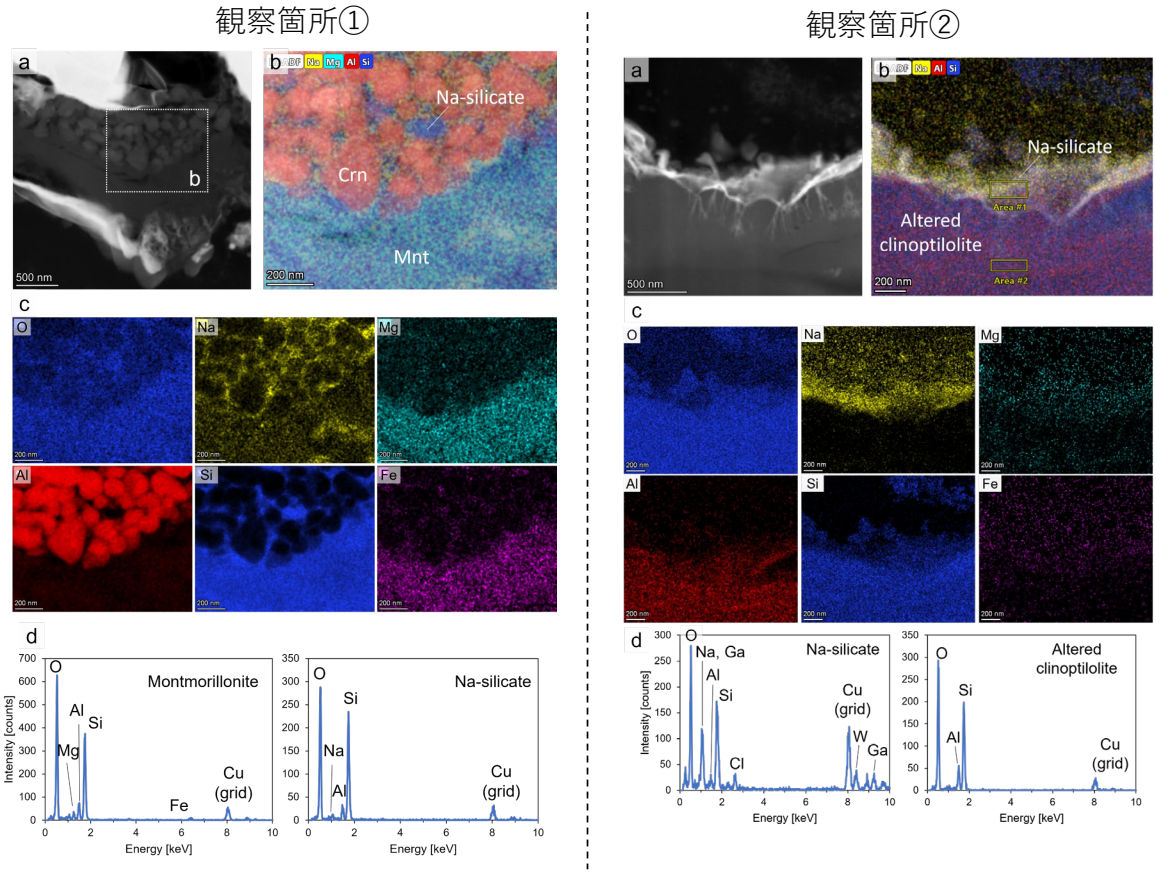


図 2.2-99　STEM-EDSによる元素マップおよびスペクトル（観察箇所①、②）
(a) HAADF像とマッピング範囲（白枠）(b) HAADF像上にNa、Mg、Al、Siの元素分布を重ねて表示。(c) 各主要元素の分布。(d) EDSスペクトル。

ここまで述べてきた Na_2SiO_3 浸漬および通水試験において、X 線回折の結果から長石や calcite の溶解が、SEM や（S）TEM による観察から非晶質物質として Na-silicate の沈殿が確認された。また、通水試験では透水係数の 4 - 5 日目での上昇、その後の減少が確認された。そこで、試験期間中のカラム内での反応によって、主要元素が流出したのか、あるいは Na-silicate の形成によって滞留したのかを検証するために、通水試験期間中でのカラム内の物質収支について計算を行った（表 2.2-70）。これは通水試験でのインプット・アウトプット各溶液の組成と、回収されたアウトプット溶液の量から次式で算出される。

$$M_i = (C_{i,0} - C_{i,t}) \times V_t$$

ここで Mi は化学種 i の物質量（mmol）、$C_{i,0}$ と $C_{i,t}$ はそれぞれインプット溶液中の化学種 i の濃度と、時間 t 経過後のアウトプット溶液中の化学種 i の濃度で、Vt は時間経過 t 後において回収された溶液量である。透水係数が当初上昇した要因としては、4 から 5 日目にかけてカラム内の Na や Al の量が低下していることから、長石などの溶解によるものが考えられる。ただし、イオン強度の高い溶液を流したことによるモンモリロナイトの収縮の寄与要因として挙げられる。さらに 5 日目以降、透水係数が低下したのは、カラム内部に Si と Na が他の元素と比べて大きく増加していることから、Na-silicate が沈殿したことが寄与していると考えられる。一方、Si と Na 以外の元素については収支でマイナスとなり、ベントナイトを構成していた鉱物が溶解したこと示唆する。

表 2.2-70　カラム内部での主要元素の物質量の収支

mmol	Fe	Si	Mg	K	Ca	Na	Al
4 days	-2.43×10^{-4}	27.4	-1.18×10^{-4}	-0.059	-3.40×10^{-3}	30.1	-12.3×10^{-3}
5 days	-2.12×10^{-4}	15.1	-2.07×10^{-4}	-0.327	-1.85×10^{-3}	-4.2	-6.55×10^{-3}
7 days	-3.80×10^{-4}	24.2	-3.43×10^{-4}	-0.046	-2.94×10^{-3}	24.2	-9.67×10^{-3}
13 days	-10.1×10^{-4}	57.9	-8.13×10^{-4}	-0.080	-62.9×10^{-3}	51.6	-23.1×10^{-3}
15 days	-1.89×10^{-4}	8.95	-1.38×10^{-4}	-0.012	$-0.9.44\times10^{-3}$	10.1	-4.46×10^{-3}
19 days	-2.69×10^{-4}	14.4	-1.34×10^{-4}	-0.018	-1.09×10^{-3}	14.2	-8.87×10^{-3}
Total	-23.1×10^{-4}	148.0	-17.5×10^{-4}	-0.248	-16.5×10^{-3}	126.0	-64.9×10^{-3}

次に、通水試験で得られたアウトライン溶液の組成がカラム内のベントナイトと平衡にあるという仮定を置いた上で、この溶液からの形成が期待される鉱物種について検討した。計算には、フランス地質調査所発行の熱力学データベース「ThermoddemV1.10_15Dec2020」に、Cemdata18（Lothenbach et al., 2019）を追加したデータベースを用いた。Cemdata18 はセメントやアルカリ刺激材料のための熱力学データベースで、C-S-H の固溶体モデル（Ca 端成分の C-S-H から Na, K, Sr を含む端成分に拡張したもの）が含まれ、本研究のような短期間の室内試験で生じる Na を含む非晶質物質の形成を検証する目的に則すると判断した。

通水 19 日後における溶液組成から計算した Si を含む鉱物の溶解度曲線を図 2.2-53 に示す。また、図中にはインプット溶液と各試験期間後のアウトプット溶液の水質データを散布図として載せている。この溶解度曲線の計算にあたっては、Themoddem および Cemdata18 に含まれる全ての鉱物種を対象に計算した後に、生成が予測された鉱物種から（１）明らかに高温・高圧条件でしか形成が期待できない鉱物種（例：forsterite や diopside など）の生成を抑制した場合、（２）そこから更に、アウトプット溶液の組成と溶解度曲線が重なるまで鉱物種を除外していった場合の 2 つの場合に分けて、それぞれ作製したものを図示した（図 2.2 26)。（２）のステップでは、常温付近での形成が考えられる鉱物種も一部除外されてしまうが、そのほとんどは短い試験期間での形成が期待できない結晶性の鉱物種（例：analcime などの沸石類）であり、一部 C-S-H などのセメント工学で登場する非晶質物質も除外対象となった。

89 種の鉱物種の生成を抑制させた（１）の場合の溶解度曲線（図 2.2-53a）を見ると、高 pH 側に Na を含むシリケートゲルである ECSH1-NaSH（$(NaOH)_{2.5}SiO_2\cdot H_2O$）の安定領域、中性側に zeoliteX（$Na_2Al_2Si_{2.5}O_9\cdot 6.2H_2O$）の安定領域が広がっている。次に、193 種の鉱物種の生成を抑制させた（２）の場合の溶解度曲線（図 2.2-53b）を見ると、高 pH 側に Na を含むシリケートゲルである ECSH2-NaSH（$(NaOH)_{2.5}SiO_2\cdot H_2O$）の安定領域、中性側に amorphous silica の安定領域が広がっている。（１）と比べると、中性付近での形成が期待される沸石類（mordenite や analcime、clinoptilolite）が除外された他、高アルカリ側では上述の ECSH1-NaSH と CxSH の固溶体 16 種（x = 1 － 1.6）が除外された。図 2.2-53b では溶解・沈殿反応が釣り合う境界付近にアウトプット溶液の組成がプロットされることから、その水質が ECSH2-NaSH の生成によって規定されていることが示唆される。なお、これらで登場した ECSH1-NaSH と ECSH2-NaSH はどちらも $(NaOH)_{2.5}SiO_2\cdot H_2O$ の組成式を持ち、前者が人工セメント水、後者が純水中での実験結果からモデル計算された異なる溶解度をもつ非晶質物質である。

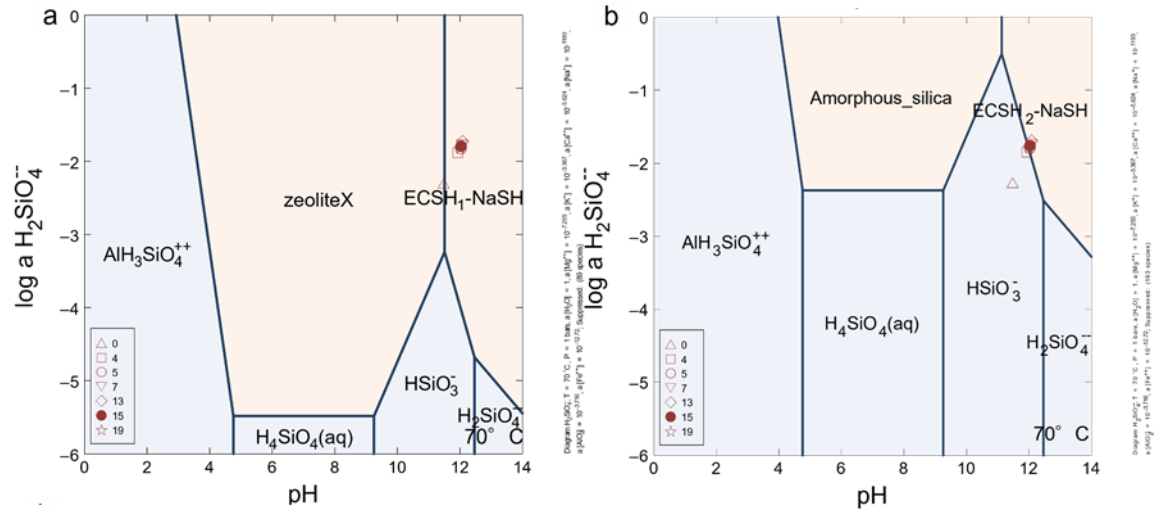


図 2.2-100　Na-Mg-Al-Si-K-Ca-Fe-H_2O系での溶解度曲線

(3)　成果と今後の課題

$FeCl_3$ 浸漬試験では、当初目的としていたベントナイト中での鉄水酸化物の形成によるセメンテーションは確認できなかった。これは、外部溶液からカラム内部のベントナイトへの Fe^{3+}拡散と pH 上昇による沈殿よりも、外部溶液とベントナイト試料との接触による hematite および akaganeite の沈殿速度が速かったためと考えられる。したがって、Fe（III）によるセメンテーションを成立させようとする場合、ベントナイト内部に Fe（III）の供給源となる物質を添加したり、あるいはベントナイト供試体に意図的に亀裂を生じさせたりするなどの工夫が必要である。

Na_2SiO_3 浸漬および通水試験では、ベントナイト中で沈殿物が生成したものの、当初想定していた非晶質シリカでなく Na を含むアルミノシリケートゲルであることが確認された。これはシリカセメンテーションを起こす実験系を設計する際に、ベントナイト間隙水に溶出してくる Si 以外の溶存種による沈殿物、特に N-A-S-H のようなアルミノシリケートゲルの形成を十分に考慮に入れる必要性を示唆している。本研究においては、この Na を含むアルミノシリケートゲルの形成によって、ベントナイト間隙水中の pH が高く維持され、長石や calcite の溶解が生じたと考えられる。一方で、透水係数が試験期間中に次第に低下したことから、構成鉱物の溶解による空隙率の増加よりも Na-silicate の沈殿による空隙率の低下が優位であったと考えられる。シリカによるセメンテーションを実現するには、Na-silicate の形成による間隙水の pH 上昇を抑えつつ、Si 濃度を維持する工夫が必要となる。例えば、本研究では Na_2SiO_3 溶液を用いたが、tetra-ethyl-ortho-silicate（TEOS）や K をベースとするケイ酸溶液を用いた場合での二次鉱物の形成条件を比較検討すべきだと思われる。さらに、アモルファスシリカが直接沈殿しない場合でも、一度生成した Na-silicate のような非晶質物質が、その後の間隙水組成の変化に応じて別のセメント物質に変化する場合も想定される。例えば、月布鉱山産のベントナイト鉱石に認められる微細なシリカ粒子なども、非晶質シリカ以外の中間物質を経て形成した可能性が十分考えられるため、長期間経過後の緩衝材性能に対するセメンテーションの影響を評価する上では、セメント物質の変質についても検証が必要かもしれない。

2.3. 熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの確証

ニアフィールドはオーバーパック、緩衝材、セメント系材料などの人工バリアと、人工バリアの設置により影響を受けると考えられる人工バリア近傍の岩盤など複数の材料から構成されており、それらの劣化・変質や材料間の相互作用などにより環境条件は時間とともに変化し、バリア構成要素の安全機能や核種移行挙動へ影響を与える可能がある。そのため、人工バリアの長期挙動評価や環境変遷を評価する技術の開発とその評価の妥当性確認が重要となる。特に、人工バリアを設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間では、熱的作用（熱輸送、熱膨張）、水理的作用（地下水浸透、温度勾配による水分移動）、力学的作用（応力変形、膨潤圧の発生）及び化学的作用（物質移行、ガスの発生と消費、間隙水の濃縮希釈、鉱物の溶解沈澱など）が相互に影響を及ぼし合う THMC 連成現象が生じ、ニアフィールドの THMC に関する状態が大きく変化すると考えられている。

ここでは、過渡期の THMC 連成現象のうち、特に緩衝材の膨潤挙動やそれに伴う埋戻し材への膨出挙動といった力学挙動や海水系地下水環境でのより長期の緩衝材の浸潤挙動に着目した評価技術の妥当性確認を幌延人工バリア性能確認試験の計測データを活用して実施する。幌延人工バリア性能確認試験の計測データを活用して、海水系地下水環境でのより長期の緩衝材の浸潤挙動に着目した既存のＴＨＣ連成解析技術の妥当性の確認を実施する。また、オーバーパックの竪置きや横置きなど様々な人工バリア設計の過渡期から長期にわたる力学挙動評価が可能となるように、人工バリアの化学的変遷を考慮した長期力学挙動が解析可能なコード（ＭＡＣＢＥＣＥ）の三次元化を実施した上で、幌延人工バリア性能確認試験において、先行事業で解析対象としていなかった、ヒーター加熱後の減熱フェーズも含めたより長期の期間を解析対象とし、既存のＴＨＣ連成解析技術と連携した再現解析を実施する。さらに、ニアフィールドの長期挙動評価の信頼性向上を図るため、幌延人工バリア性能確認試験に加え、相似則に基づきより長期間に相当するデータが取得可能な時間加速実験である遠心力模型実験を活用し、長期挙動を推定するための技術開発を行う。

令和５年度は、幌延人工バリア性能確認試験のヒーター加熱後の減熱フェーズも含めたより長期の期間を解析対象とした既存のＴＨＣ連成解析技術を用いた幌延人工バリア性能確認試験の再現解析に着手した。その成果について、2.3-1 項で述べる。

また、幌延人工バリア性能確認試験での力学挙動の再現解析に向けた準備として、MACBECE の三次元化を行い、プロトタイプを作成するとともに、三次元化により生じる計算負荷の軽減の方法として、高速ソルバや並列化等の導入を検討し、MACBECE の高度化に向けた方針を整理した。その成果について、2.3-2 項で述べる。

さらに、遠心力模型実験については、試験計画及び解析計画を策定するとともに、模型材料の特性把握を実施し、遠心模型実験の準備を行った。その成果について、2.3-3 項で述べる。

2.3.1. 熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの開発

(1) 背景と目的

人工バリアを設置した時点から緩衝材が飽和に至るまでの過渡的な期間では、熱的作用（熱輸送、熱膨張）、水理的作用（地下水浸透、温度勾配による水分移動）、力学的作用（応力変形、膨潤圧の発生）及び化学的作用（物質移行、ガスの発生と消費、間隙水の濃縮希釈、鉱物の溶解沈澱など）が相互に影響を及ぼし合う連成現象が生じると考えられている。このような過渡期におけるニアフィールド環境の把握を始めとして、安全評価における核種移行の初期状態の設定や、オーバーパックの腐食寿命評価に必要となるニアフィールド環境条件に関する情報の提供を目的として、熱－水－応力－化学（THMC）連成解析コード（以下、Couplys という）の開発が進められてきた（日本原子力研究開発機構, 2008；2009；2010；2011；2012；2013；2014；2015）。Couplys の構成と現時点で考慮できる相互作用の概略を図 2.3-1 に示す。これまでに、幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験（中山, 2018）を対象として、Couplys による THMC 連成解析を実施し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱と地下水の浸潤にともなう緩衝材間隙水の化学的な環境変化に着目した評価を実施した。そして、コンクリート支保の影響を受けた海水系地下水が浸潤する緩衝材の間隙水組成や酸化還元電位の変遷などオーバーパックの腐食評価に必要となる情報を取得した。さらに、原位置において計測されている緩衝材の間隙水の pH や pe との比較を通じた THMC 連成モデルの適切性の確認を行っており、間隙水の pH については、スメクタイトの酸・塩基反応によって、また、間隙水の pe については、緩衝材中に含有する黄鉄鉱が初期間隙中に存在する酸素を消費する反応を考慮することで、それぞれの変遷を再現することを確認した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）。さらに、より多様な地質環境条件に応じた THMC 連成挙動を再現できる現象解析モデルとして、海水系地下水環境下での緩衝材の浸潤挙動を適切に評価するための解析手法の構築を行った。この中では、海水系地下水の浸潤を想定した室内での浸潤試験を実施し、緩衝材の浸潤挙動に及ぼす浸潤溶液中の NaCl 濃度の影響を把握した。そして、Couplys による水理解析と地球化学解析との連成解析手法により、緩衝材中に初期に存在する間隙水と浸潤溶液とが混合して形成される間隙水組成と、それに依存して変化する透水特性の影響を考慮した海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価モデルを構築している（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。そして、本連成解析モデルの適切性を確認するために、原子力機構が幌延深地層研究計画において実施している人工バリア性能確認試験を対象とした再現解析を実施した。この解析では、緩衝材の浸潤挙動に着目し、廃棄体を模擬したヒーターの発熱により温度勾配が形成された条件下における海水系地下水の浸潤と緩衝材の間隙水組成とともに変化する水理特性に与える影響を考慮した。そして、人工バリア性能確認試験で得られている緩衝材の浸潤挙動に関する計測データとの比較を通じて、海水系地下水環境下における THMC 連成解析モデルの適用性を確認している（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）。

本事業では、過渡的な期間におけるニアフィールド環境の状態変遷を適切に評価するための技術開発を目的とし、その一環として、廃棄体の温度がピークに達した後に人工バリアの温度が低下していく過程を含めたニアフィールド環境評価を可能とする THMC 連成解析モデルの構築を行う。ここでは、Couplys によって、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験を対象として、これまで評価の実績が少ない廃棄体を模擬したヒーターの温度を低下させていく減熱時における人工バリアの再冠水挙動を含む評価を実施する。そして、原位置での計測結果との比較を通じて連成解析モデルの適切性の確認を行うとともに、連成解析モデルやパラメータの整備と課題の抽出を行う予定である。

令和 5 年度は、このような原位置試験における緩衝材中の水分移動を評価するにあたり、緩衝材中において廃棄体の発熱によって生じる温度勾配による水分移動を表現する温度勾配水分拡散係数について検討を行った。これまで、温度勾配水分拡散係数については、原位置試験の結果を再現するような値の設定や（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2020）、多孔質媒体に対する水、蒸気および熱の輸送を連成させた二相流の解析コード（TOUGH2）（Pruess, 1991）を用いて、人工バリア体系において廃棄体の発熱を想定した温度勾配条件下での浸潤挙動に関する事例解析を行い、得られた浸潤プロファイルに基づいて温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータの設定を行ってきた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2021）。しかしながら、原位置試験を対象とした再現解析の実施においては、解析物性値や境界条件が必ずしも明確でないことや、TOUGH2 による事例解析では、気相の移動に関する解析パラメータの設定において経験則を用いていることなど、これらの再現解析を通じて設定された温度勾配水分拡散係数には不確実性が含まれているものと考えられる。このようなことから、緩衝材中の水分を温度勾配によって移動させる室内試験を実施し（中山，2023）、試験結果に基づき温度勾配水分拡散係数を設定することとした。そして、Couplys による熱－水－化学連成解析によって、試験で得られた水分分布を再現する温度勾配水分拡散係数を求めた。さらに、得られた温度勾配水分拡散係数を用いて、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験の再現解析を実施した。解析では、廃棄体を模擬したヒーターの出力を低下させた減熱期を含む期間を対象として緩衝材の再冠水挙動の評価を実施した。

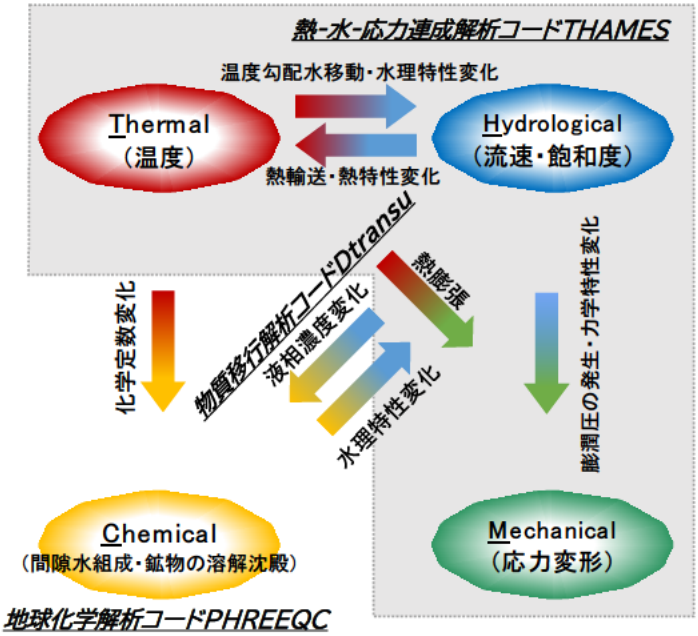


図 2.3-1　熱－水－応力－化学（THMC）連成解析コードCouplysの概略

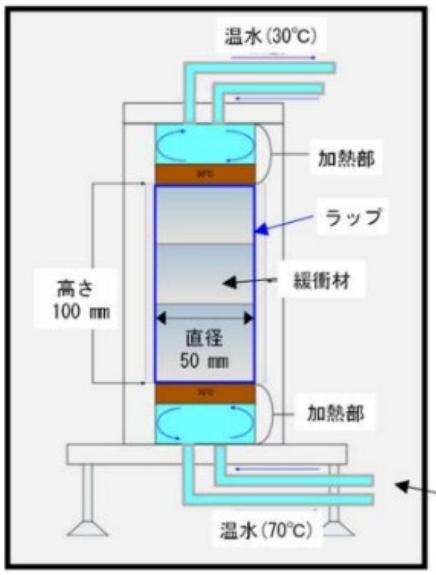
(2)　実施内容

1)　室内試験

①　　概要と目的

連成解析パラメータの一つである緩衝材の温度勾配水分拡散係数を設定することを目的として、温度勾配によって生じる緩衝材中の水分移動を把握するための試験を実施した（中山，2023）。

試験は、図 2.3-2 に示すような試験容器内で供試体上面を 30℃、下面を 70℃で加熱し供試体に温度勾配を形成させた。そして、所定の時間経過後に供試体の水分分布を測定した。供試体は、ケイ砂 30wt%混合ベントナイトを乾燥密度 1.8Mg/m^3、直径 50mm、高さ 100mm に圧縮成形して作製した。供試体の含水比は 10.5%である。



試験条件	
緩衝材	クニゲル V1：70 % ケイ砂：30 %
初期乾燥密度	1.8 Mg/m^3
初期含水比	10.5 %
温度	上部：30 ℃ 下部：70 ℃
試験期間	7、11、18 日

図 2.3-2　温度勾配水分移動試験

②　試験結果

上記の温度勾配を 18 日間与えた後に水分分布を測定した結果を後述する解析結果と合わせて図 2.3-3 に示す。これより、低温側の供試体上部で水分量が増加、高温側の供試体下部で水分量が低下しており、温度勾配による水分の移動を把握した。

本試験によって得られた水分分布に基づき、次項で示す再現解析によって温度勾配水分拡散係数を求める。

2)　熱－水－化学連成解析による温度勾配水分拡散係数の設定

①　解析条件

緩衝材中で生じる温度勾配による緩衝材の水分移動を適切に評価するための温度勾配水分拡散係数について、上述した室内試験結果に基づき設定を行った。

②　解析条件

上述した試験によって得られた水分分布を再現するための解析には Couplys を用いた。Couplys では、緩衝材の間隙水中の NaCl が水理特性に及ぼす影響を考慮することが可能であるが、緩衝材の主成分であるクニゲル V1 に含有する可溶性塩不純物の NaCl の含有量が少ないことや（小田、柴田、1999)、試験期間が 18 日間と短いことから、間隙水と含有鉱物との反応やイオン交換反応などの水－鉱物反応については考慮しないものとした。また、図 1 に示すように、応力変形が熱や水理および間隙水組成に及ぼす影響が考慮されていないことから、ここでは、TH 連成解析として実施した。

解析では、高温側から低温側への一次元の水の流れのみを考慮することとし、要素数 100 でモデル化した。境界条件として、モデル底面を 70℃、モデル上面を 30℃の温度固定境界とした。

Couplys における不飽和状態の緩衝材中の水分移動は、ダルシー則に加えて温度勾配により水分移動が生じるようにモデル化されている。

$$\mathbf{F}^{w} = -k_r k_w \nabla h - D_T \nabla T \qquad \text{式(2.3-1)}$$

ここで、$\mathbf{F}^{w}$：流量フラックス、k_r：比透水係数、k_w：透水係数、h：全水頭、D_T：温度勾配水分拡散係数、T：温度である。本モデルでは、気相の流れを考慮せず、気相の圧力は常に大気圧で一定を仮定している。

透水係数k_w（m/s）は、多孔質媒体の透過抵抗を表す固有透過度κ（m²）を用いて次式で表すことができる。

$$k_w = \frac{\kappa \rho_w g}{\mu} \qquad \text{式(2.3-2)}$$

ここで、ρ_w：透過溶液の密度（Mg/m³）、g：重力加速度（m/s²）、μ：透過溶液の粘性係数（Pa·s）であり、透過溶液の密度および粘性係数が温度によって変化することで透水係数の温度依存性を考慮している。そして、固有透過度は、透水試験結果（松本ほか, 1997；菊池, 棚井, 2005；菊池ほか, 2003）および浸潤溶液中の NaCl 濃度を変化させた浸潤試験結果に基づき、不飽和時の水理特性の NaCl 濃度依存性を考慮した次式が与えられている（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, 2022）。

$$\kappa = 1.376 \times 10^{-20} exp\left(1.035c \times {S_r}^{12}\right) \qquad \text{式(2.3-3)}$$

ここで、S_r：間隙水飽和度（-）、c：透過溶液中の NaCl 濃度（wt%）である。本解析においては、間隙水中の NaCl が水理特性に及ぼす影響を考慮しないことから、上式に基づき、緩衝材の固有透過度を 1.38×10^{-20}m² とした。

緩衝材のサクションΨ（mH_2O）と体積含水率 θ (-) との関係を表す水分特性曲線については、van Genuchten モデル（van Genuchten, 1980）を用いた。

$$S_e = \frac{\theta-\theta_r}{\theta_s-\theta} = [1 + |\alpha\psi|^n]^{-m} \quad m = 1 - \frac{1}{n} \qquad \text{式(2.3-4)}$$

ここで、S_eは有効間隙水飽和度（-）、ψはサクション（mH_2O）である。飽和時の体積含水率$\theta_s = 0.329$、最小体積含水率$\theta_r = 0.000$、αと nはフィッティングパラメータである。また、緩衝材の水分特性曲線は、以下のような式で表されることがわかっており（鈴木・高山, 2020）、式(2.3-4)のαと nは式(2.3-5)との比較により推定された 5.00×10^{-3}m^{-1}、1.38 を用いた（大野ほか, 2019）。

$$S_r = 0.9675 {n_e}^{-1.77} \psi^{-0.371} \qquad \text{式(2.3-5)}$$

比透水係数k_r（-）は、間隙水飽和度S_r（-）の関数として、Corey モデル（Corey, 1954）の指数部分を変数としたモデルによって、FEBEX（Full scale Engineered Barriers Experiment）プ

ロジェクトや人工バリア性能確認試験の緩衝材に対して設定された次式を用いた（ENRESA, 2000；日本原子力研究開発機構, 2018）。

$$k_r = {S_r}^3 \qquad \text{式(2.3-6)}$$

熱伝導率λ（W/mK）は、乾燥密度ρ_d（Mg/m³）と含水比ω（%）の関数として次式が得られている（鈴木・高山, 2020）。

$$\lambda = -2.01 + 7.56 \times 10^{-2}\omega - 7.00 \times 10^{-4}\omega^2 + 1.56\rho_d \qquad \text{式(2.3-7)}$$

また、比熱c（kJ/kgK）については、密度依存性が確認できないことから、含水比ω（%）の関数として次式が得られている（菊池・棚井, 2003）。

$$c = \frac{67.32+4.18\omega}{100+\omega} \qquad \text{式(2.3-8)}$$

温度勾配水分拡散係数は、平成 31 年度までに実施してきた FEBEX プロジェクトにおける原位置試験の再現解析結果に基づいて間隙水飽和度の依存性を考慮し（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2019；2020）、低水分領域と高水分領域で水蒸気の移動が小さくなるとした Borgesson らのモデル（Börgesson and Hernelind, 1999）に準じて次式によって設定した。

$$\begin{aligned} &D_T = D_{Tb} \qquad S_{rA} \le S_r \le S_{rB} \\ &D_T = D_{Tb} \cdot cos^a\left(\frac{S_r - S_{rA}}{1 - S_{rA}}\frac{\pi}{2}\right) \qquad S_r \ge 0.4 \\ &D_T = D_{Tb} \cdot sin^b\left(\frac{S_r}{S_{rB}}\frac{\pi}{2}\right) \qquad S_r \le 0.3 \end{aligned} \qquad \text{式(2.3-9)}$$

ここで、D_Tは温度勾配水分拡散係数（m²/sK）、D_{Tb}は間隙水飽和度Srが、S_{rA}～S_{rB}の範囲における温度勾配水分拡散係数（m²/sK）、a及びbはそれぞれ高水分領域と低水分領域においてD_Tの低下量を決定するパラメータである。さらに、次式により温度勾配水分拡散係数の温度依存性を考慮した（核燃料サイクル開発機構，1999a）。

$$D_T = D_{Tb} \times \exp\left(\alpha_T \times (T - T_0)\right) \qquad \text{式(2.3-10)}$$

ここで、Tは現在温度（℃）、T_0は低温側の温度（℃）、α_Tはパラメータである。

本解析で用いた物性値を表 2.3-1 に示す。

表 2.3-1　温度勾配水分移動試験を対象とした緩衝材の解析物性値

真密度	Mg/m^3	2.64
乾燥密度	Mg/m^3	1.80
空隙率	-	0.329
初期含水比	-	0.105
実効拡散係数*1	m^2/s	3.0×10^{-10}
縦分散長*2	m	0.01
＊1：核燃料サイクル開発機構（1999b）、＊2：供試体長さの 1/10		

③　解析結果

前述した試験結果によって得られている水分分布を良く再現するパラメータの検討として表 2.3-2 に示す解析ケースを実施した。その結果、図 2.3-3 に示すように、Case03 が試験結果を再現しており、式(2.3-9)および式(2.3-10)中のパラメータは、D_T＝3.00×10-12（m2/sK），S_{rA}=0.7, S_{rB}=0.8, $a = 1.0$, $b = 1.0$, α_T＝0.03, T_0＝30℃であった。そして、温度勾配水分拡散係数と間隙水飽和度および温度との関係は図 2.3-4 のようになる。なお、Case01 は、水蒸気の発生や気相の移動を考慮できる解析コード（TOUGH2）を用いて、気相の流れと水蒸気量の勾配によって生じる水蒸気の移動を含む温度勾配条件下における浸潤挙動評価を行い、得られた浸潤プロファイルに基づいて温度勾配によって生じる水分移動を表すパラメータの設定を行ったものである（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2021）。また、case02 は、温度勾配水分拡散係数を間隙水飽和度あるいは温度に依存せず一定としたケースである。

表 2.3-2　温度勾配水分移動試験の解析ケース

	固有透過度(m^2)	D_{Tb} (m^2/sK)	S_{rA} (-)	S_{rB} (-)	a (-)	b (-)	α_T (-)	T_0 (°C)	備考
Case01	1.38E-20	3.00×10^{-12}	0.3	0.4	2.5	10.0	0.02	30	TOUGH2 による浸潤解析結果を再現するパラメータ
Case02	1.38E-20	3.00×10^{-12}	—	—	—	—	—	—	温度勾配水分拡散係数を一定としたケース
Case03	1.38E-20	3.00×10^{-12}	0.7	0.8	1.0	1.0	0.03	30	温度勾配水分移動試験結果のフィッティングケース

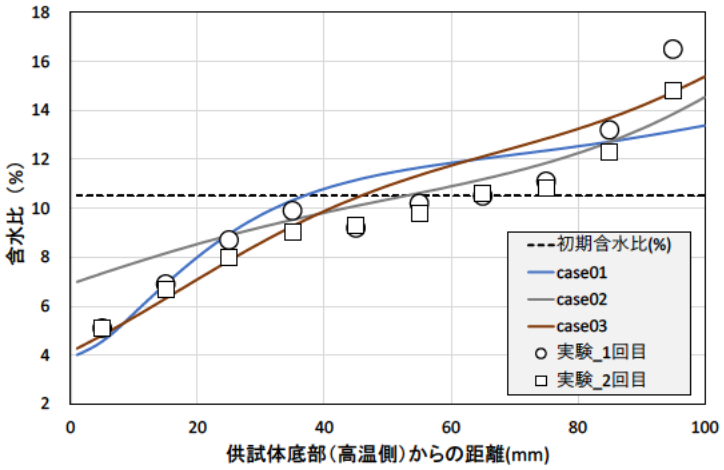


図 2.3-3　温度勾配水分移動試験結果と熱－水連成解析結果

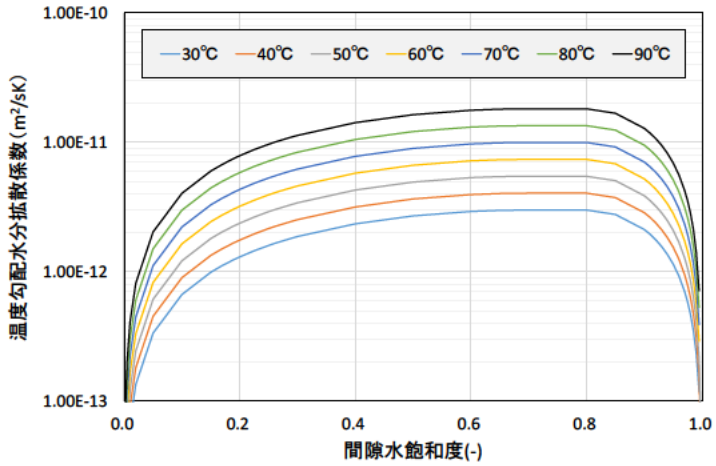


図 2.3-4　緩衝材の温度勾配水分拡散係数

3) 幌延人工バリア性能確認試験における浸潤挙動の再現解析

① 概要と目的

過渡的な期間におけるニアフィールド環境の状態変遷を適切に評価するための技術開発を目的とし、その一環として、廃棄体の温度がピークに達した後に人工バリアの温度が低下していく過程を含めたニアフィールド環境評価を可能とする THMC 連成解析モデルの構築を行う。ここでは、幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験を対象として、人工バリア内への地下水の浸潤とともに廃棄体を模擬したヒーターの加熱によってオーバーパック表面の温度を 90℃に維持した約 2000 日が経過した後に、ヒーターの出力を低下させた減熱期を含む期間を対象として緩衝材の再冠水挙動の評価を行った。

② 解析条件

幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験は、幌延の地質環境を一つの事例として実規模の処分孔竪置き方式の人工バリアを設置し、人工バリアの定置から再冠水までの現象を模擬したものである。平成 27 年 1 月から令和 2 年 6 月までの約 5 年間は、廃棄体を模擬したヒーターを加熱することによってオーバーパック表面の温度を 90℃に維持した試験が行われている。その後、令和 2 年 7 月にオーバーパック表面の温度を 50 °C に低下させ、さらに、令和 3 年 5 月にはヒーターによる加熱を停止する減熱過程の試験が実施されている（中山ほか, 2019）。

解析には Couplys を用いて THC 連成解析として実施し、ヒーターによる加熱から減熱過程までを含む 10,000 日間を評価の対象とした。解析では、幌延地下水に含まれる NaCl の濃度が緩衝材の再冠水挙動に影響を及ぼすことから、緩衝材中に存在する間隙水と幌延地下水とが混合して形成される間隙水組成とそれに依存して変化する水理特性の影響を考慮した（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2022）。また、緩衝材の温度勾配水分拡散係数として、上述したパラメータを用いた。解析ジオメトリは 3 次元とし、人工バリア性能確認試験を構成する廃棄体を模擬したヒーターを内蔵したオーバーパック（以下、模擬オーバーパックという）、緩衝材、緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂層、埋め戻し材、支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグおよび岩盤について、32,722 節点、29,226 要素でモデル化した（図 2.3-5 参照）。モデル化の範囲は、温度に対して外側境界の影響が生じないように廃棄体を模擬したヒーターから 25m を確保した。

熱的境界条件として、図 2.3-5 中の左図のモデル上下面および背面は、初期温度として 23℃での固定境界、モデル前面および左右両面は断熱境界とした。また、模擬オーバーパックの表面温度、緩衝材と岩盤の隙間に充填した砂層中の温度は、計測値に整合させるように設定した（図 2.3-6 参照）。このような温度の変動は、ヒーターの出力調整や、緩衝材や埋め戻し材の浸潤を促進させるための注水の影響によるものである。初期条件としての温度は、全領域で 23 °C とした。

水理的な境界条件としては、モデル上下の両面および背面は、後述する初期の地下水位での固定境界、モデル前面および左右の両面は不透水境界とした。水理に関する初期条件として、岩盤については、原位置での地下水位の計測結果（望月ほか，2019）に基づき人工バリア性能確認試験が実施されている地表面から-350m を基準面として全水頭を 22mH_2O とした。緩衝材の初期間隙水飽和度は製作時の平均的な値の 0.58 とした。埋め戻し材は、原位置で締固め施工した下側部分を乾燥密度 1.2 Mg/m^3、含水比 35.2%、間隙水飽和度を 0.80 とした。また、ブロックを積み重ねる方法で施工した上側部分を乾燥密度 1.4 Mg/m^3、含水比 33.6 %、間隙水飽和度を 0.91 とした（中山ほか, 2016）。支保コンクリート、路盤、コンクリートプラグおよび砂層は、間隙が水で飽和した状態を仮定した。

地球化学に関する境界条件は、モデル上下面および背面を一定の地下水組成の濃度で拘束した。

地下水組成については、幌延深地層研究計画における試錐調査のうち、HDB-6 孔で採取された地下水に対する分析結果に準じて設定した（藤田ほか, 2007）。緩衝材および埋め戻し材の鉱物は、玉髄、方解石、黄鉄鉱とし、イオン交換反応および酸・塩基反応を考慮した（核燃料サイクル開発機構, 1999b）。また、試験坑道の底面に設置されているコンクリート路盤、コンクリートプラグおよび支保コンクリートで考慮するセメント水和物生成物としては、初期水和物の主成分である $Ca(OH)_2$ および CSH とした（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。そして、これらの鉱物あるいはセメント水和生成物と純水との平衡状態を仮定し、地球化学解析コード PHREEQC を用いた計算によって初期間隙水組成を設定した（表 2.3-3 参照）。

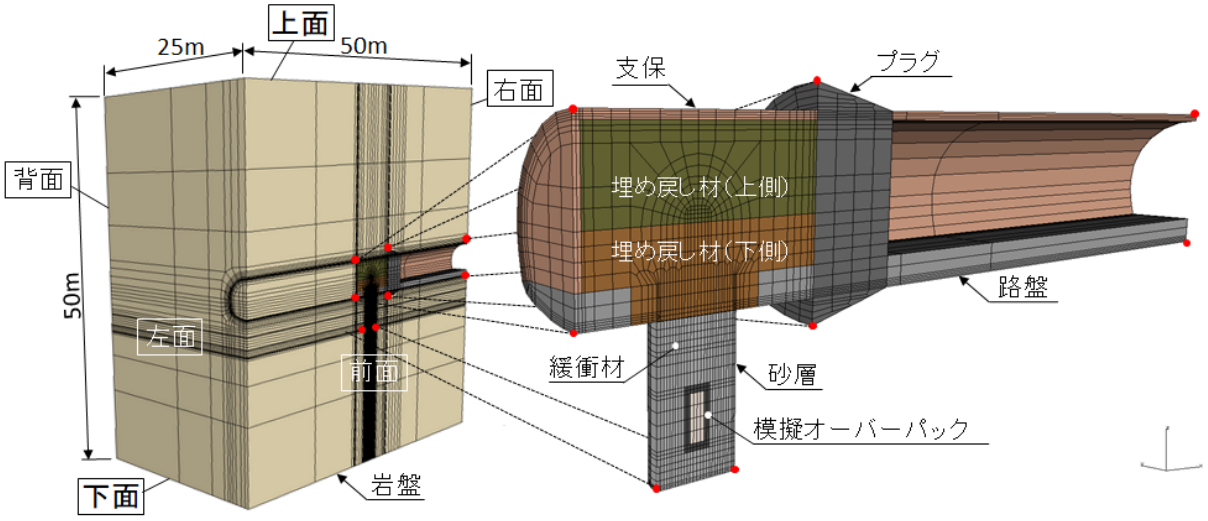


図 2.3-5　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた解析メッシュモデル

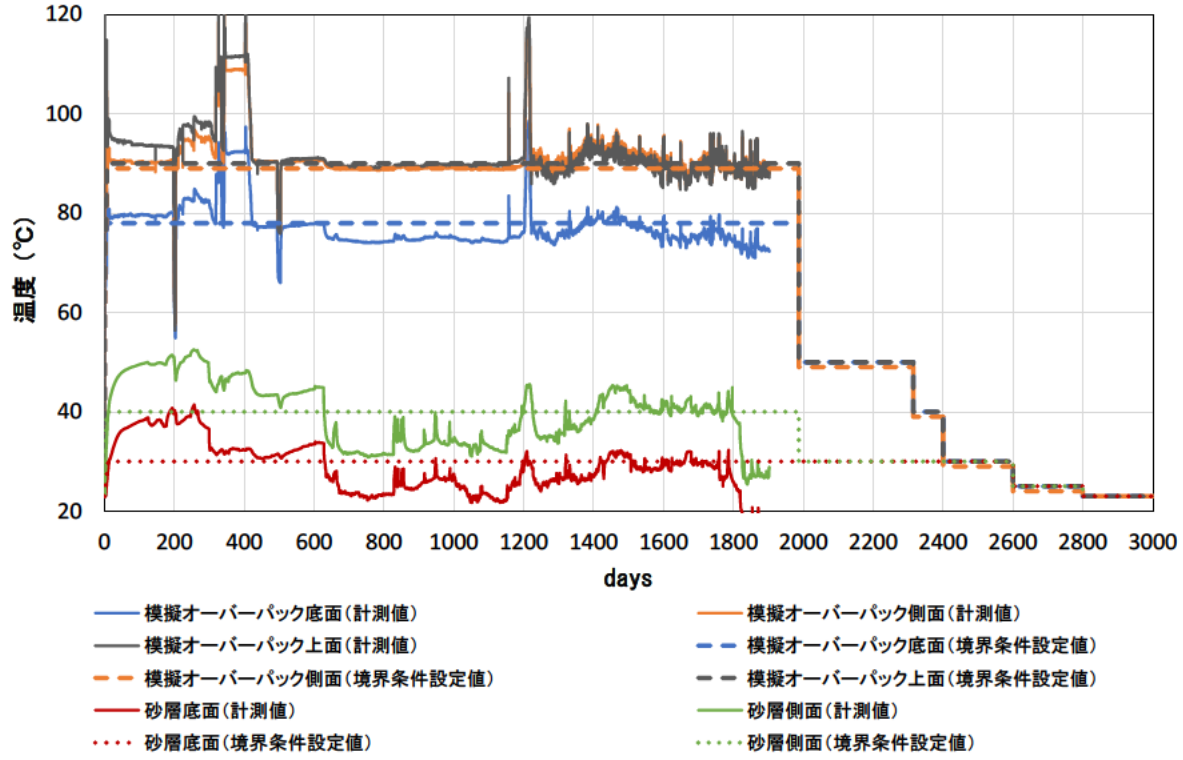


図 2.3-6　THC連成解析における温度の境界条件

表 2.3-3　人工バリア性能確認試験試の解析評価における初期間隙水組成

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

③ 解析物性値

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

$$\lambda = 0.339 + 2.97 \times 10^{-2}\omega \qquad \text{式(2.3-11)}$$

$$c = \frac{40.00 + 4.18\omega}{100 + \omega} \qquad \text{式(2.3-12)}$$

ここで、ωは含水比（%）である。

緩衝材の熱伝導率λ (W/m K)は、式(2.3-7)に、比熱c (kJ/kg K)については、式(2.3-8)に示した通りである。

緩衝材のサクションΨ (mH_2O)と体積含水率 θ (-)との関係を表す水分特性曲線は、式(2.3-4)にある。固有透過度は、間隙水中の NaCl 濃度とそれによって変化する透水性の影響を考慮し、間隙水飽和度が高いほど間隙水中の NaCl の濃度が透水性に与える影響が大きくなる式(2.3-3)を用いた（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2022）。そして、温度勾配拡散係数は、前述した通りである。

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

熱力学データーベースは、核燃料サイクル開発機構が開発した解析的温度補正式の係数が整備された JNC-TDB 990900c1.tdb (Arthur, 1999)を用いた。以上、解析に用いた物性値を整理して表 4 に示す。

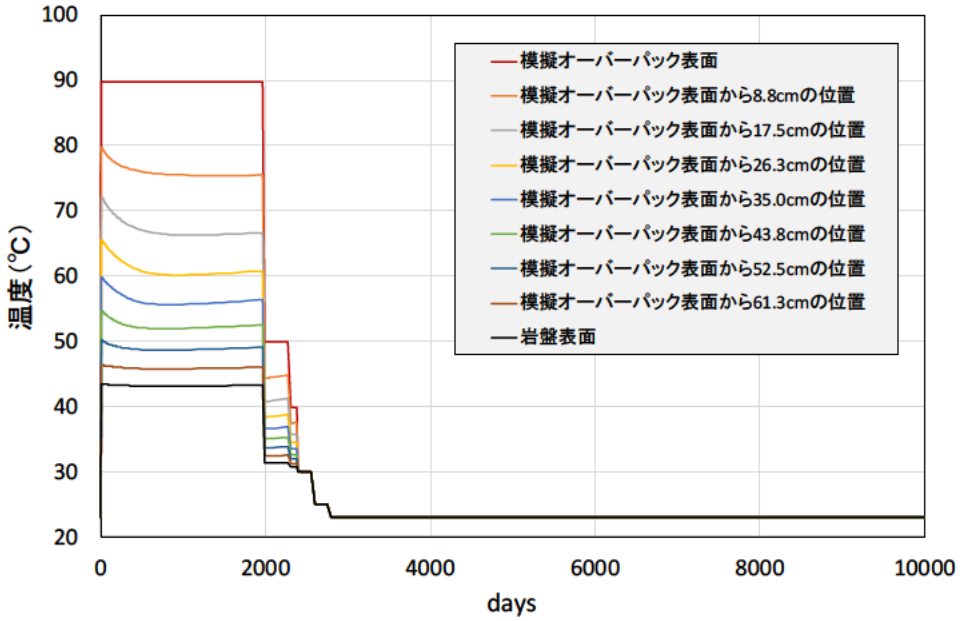
本解析に用いる Couplys は、応力変形と熱および水理特性の相互作用が考慮されていないため（図 2.3-1 参照）、応力変形挙動が緩衝材の浸潤挙動の解析結果に影響を与えない。このため、本評価においては、節点の変位を拘束して応力変形を考慮せずに THC 解析として実施した。

表 2.3-4　人工バリア性能確認試験の解析評価に用いた物性値

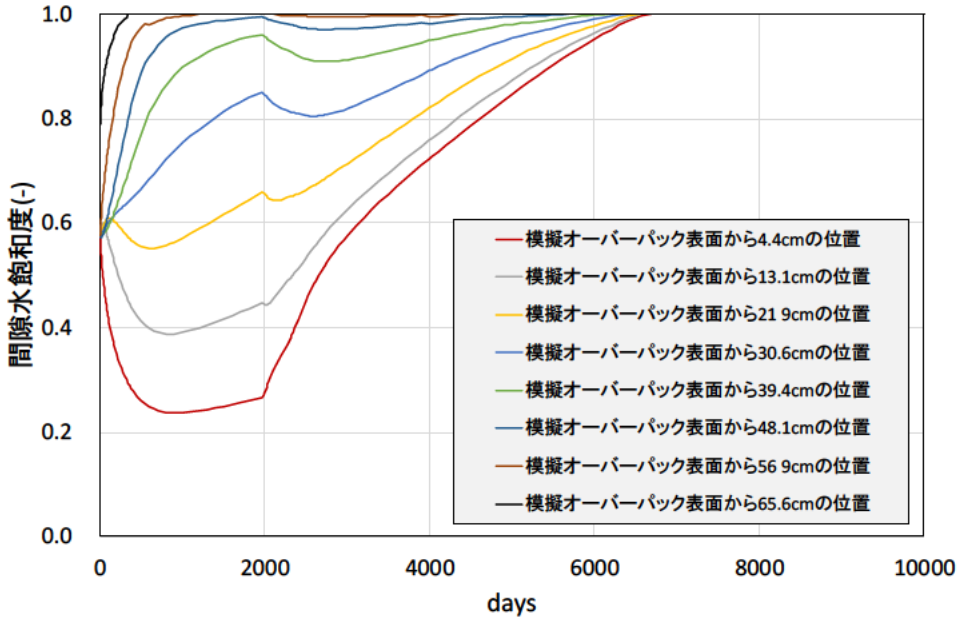
パラメータ	単位	岩盤	砂層	支保 路盤 プラグ	埋め戻し 材 （下側）	埋め戻し 材 （上側）	緩衝材	模擬オ ーバー パック
真密度	Mg/m^3	2.454	2.51	2.620	2.593	2.593	2.680	7.800
乾燥密度	Mg/m^3	1.354	1.4	2.280	1.200	1.400	1.800	－
空隙率	－	0.448	0.442	0.130	0.538	0.460	0.328	－
初期間隙水 飽和度	－	1.00	1.00	1.00	0.80	0.91	0.58	－
熱伝導率	W/m K	1.23	2.04	2.56	式(2.3-11)		式(2.3-7)	53.0
比熱	kJ/kg K	1.27	1.28	1.05	式(2.3-12)		式(2.3-8)	0.46
固有透過度	m^2	1.33×10^{-15}	1.00×10^{-13}	9.1×10^{-18}	3.00×10^{-18}	1.76×10^{-19}	式(2.3-3)	－
水分特性曲線	－	－	－	－	式(2.3-4) θ_S =0.538 θ_r=0.000 α=3.80×10^{-3} n=1.29	式(2.3-4) θ_S =0.460 θ_r=0.000 α=3.80×10^{-3} n=1.29	式(2.3-4) θ_S=0.329 θ_r=0.000 α=5.00×10^{-3} n=1.38	－
比透水係数	－	－	－	－	$S_r{}^3$（S_r：間隙水飽和度（-））			－
温度勾配水分 拡散係数	m^2/s K	－	－	－	－	－	式(2.3-9) および 式(2.3-10)	－
実効拡散係数	m^2/s	9.00×10^{-12}			3.00×10^{-10}			－
縦分散長	m	0.1						－
横分散長	m	0.01						－

④　解析結果

人工バリア性能確認試験を対象とした THC 連成解析結果として、緩衝材中の温度および間隙水飽和度の時間変化を図 2.3-7 に示す。解析出力ポイントは、緩衝材の中間深度における模擬オーバーパックと岩盤間の水平方向である。これより、模擬オーバーパックの表面温度を 90℃とした約 2000 日までの間は、温度勾配による水分移動によって緩衝材内側では減少し、岩盤側の緩衝材外側では地下水の浸潤によって増加している。約 2000 日後に、模擬オーバーパックの表面温度を 50℃にすると、緩衝材内側でも水分が増加し始め、約 6500 日で緩衝材全体が飽和する結果となっている。



(a) 温度



(b) 間隙水飽和度

図 2.3-7　緩衝材中の温度と間隙水飽和度に関するTHC連成解析結果

(3) 成果と今後の課題

令和 5 年度は、過渡的な期間におけるニアフィールド環境の状態変遷を適切に評価するための技術開発として、THMC 連成挙動の中で扱われる温度勾配によって生じる水分移動の評価モデルについて検討を実施した。本検討では、緩衝材中に温度勾配を形成させることで水分移動を生じさせる試験を行い、測定された水分分布に基づく再現解析により温度勾配水分拡散係数を設定した。本検討で得られた温度勾配水分拡散係数は、緩衝材の間隙水飽和度および温度に依存して変化するモデルとして設定した。さらに幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験の予察解析として、廃棄体を模擬したヒーターの温度を低下させる減熱期を含めた緩衝材の再冠水挙動に着目した THC 連成解析を実施した。解析では、幌延地下水に含まれる NaCl の濃度が緩衝材の再冠水挙動に影響を及ぼすことを考慮し、水理特性が間隙水飽和度と NaCl 濃度によって変化するモデルを用いた。また、上記で設定した温度勾配水分拡散係数を用いた。その結果、廃棄体を模擬したヒーターによってオーバーパック表面の温度を 90℃に設定した期間は、温度勾配による水分移動によって緩衝材内側では水分が低下し乾燥した状態が維持されている。一方、岩盤側に近い緩衝材外側では地下水の浸潤によって水分が増加した。その後、約 2000 日後にヒーター出力を低下させてオーバーパック表面の表面温度を 50℃にすると、温度勾配が小さくなることによってオーバーパック側から岩盤側に向かって移動する水分量が減少することで緩衝材内側の水分が増加に転じている。そして、6300 日後に緩衝材全体が飽和する結果となった。

今後は、人工バリア性能確認試験において計測されている浸潤挙動に関するデータとの比較を通じて、廃棄体を模擬したヒーターの温度を低下させる減熱期を含めた緩衝材の再冠水挙動評価に関する Couplys の適切性を確認していく。また、国際共同研究 DECOVALEX などを活用し、原位置試験などを対象とした再現解析を通じて適切性を確認するとともに検証事例を蓄積し、解析モデルの信頼性を向上していく必要がある。他方、図 2.3-1 で示したように、現状の Couplys は、力学特性と地球化学特性との相互作用が考慮されていないため、応力変形が間隙水化学（あるいは、間隙水化学が応力変形）に及ぼす影響を評価できない。ニアフィールドで生じる現象を連成挙動として扱うべきかどうかを把握するためには、力学解析と地球化学解析との間や、力学解析側から熱解析および水理解析側へ解析結果を提供するスキームを追加し、THMC 連成解析モデルを構築していくことが望まれる。また、2015 年 1 月から実施された人工バリア性能確認試験では、一時的に 100℃を超えた温度環境となっているが（中山ほか, 2019）、このような高温条件での物性値やモデルが整備されていないため再現解析の中で考慮することができなかった。このようなことから、緩衝材の温度が 100℃を超えた条件下での THMC 連成解析モデルの適用性の確認を始めとして物性値の取得やモデル開発も必要となってくる。他方、過渡期の THMC 連成解析モデル開発の目的である安全評価における核種移行解析の初期状態の設定や、オーバーパックの腐食寿命評価に必要となるニアフィールド環境条件に関する情報の提供と、これらの情報が反映される評価技術体系の整備として、2.3 項で実施されているようなニアフィールド状態変遷評価技術への統合とニアフィード核種移行評価への反映も課題となる。

2.3.2. ニアフィールド長期力学解析コード開発

(1) 背景と目的

地層処分システムを対象とする従来の安全評価では、保守的に簡略化されたモデルや保守的設定に基づくパラメータが用いられてきた。今後の処分サイト選定段階における安全評価には、実際のサイトの地質環境条件などを反映することに加え、様々な処分概念や設計オプション間の比較、サイト間の優劣などが、より具体性をもって検討されると考えられる。従来の保守的な評価モデルではサイト間やデザイン間の相違を定量的に表現することができず、より現実に即した挙動を評価する手法が必要となる可能性がある。地層処分対象となる放射性廃棄物のうち、例えば、TRU 廃棄物の地層処分システムの場合は、周辺岩盤、支保工、緩衝材として使用されるベントナイト系材料、廃棄体や坑道内部の埋め戻し材として使用されるセメント系材料などの複合的な材料で構成される。これらの材料間で多様な相互作用が生じ、これらが相互に影響しあいながら処分場の状態は変遷していくと考えられる。この現象は、変質の促進あるいは抑制の正負のフィードバックループを内包する非線形の連成現象であるとされる（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）。このような化学・力学・物質輸送の連成及び材料間の相互作用がもたらす非線形現象を評価するための複合現象評価技術の開発が進められている（例えば、Benbow et al., 2020）。

上記に示した複合現象評価技術の一部として、化学及び物質輸送と連携して処分施設の力学挙動を評価する技術が必要となる。このような背景のもと、長期力学挙動解析コード MACBECE（Mechanical Analysis considering Chemical transition of BEntonite and CEment materials）の開発が進められてきた。これまで、岩盤クリープ、緩衝材の変質に伴う膨潤圧の低下、セメント系材料における Ca 溶出による剛性・強度の低下とそれによるひずみ軟化挙動、金属の腐食膨張などによりセメント系材料に割れが発生する現象などを考慮できるように開発を行ってきた（例えば、三原ほか, 2010；平野ほか, 2016；日本原子力研究開発機構, 2018b）。このような処分施設の状態変遷評価から得られる場の密度や透水性分布の変遷などの情報は、核種移行挙動を評価する際に用いることができる。

さらに、過渡期の緩衝材の飽和度変化等に伴う力学的な状態変化を解析する機能を MACBECE に追加し、過渡期から長期まで一貫して評価できる解析システムを構築している（原子力機構、原子力環境整備促進・資金管理センター、2023）。過渡期の解析機能について、幌延人工バリア性能確認試験で得られている再冠水時の応力や変位に関する計測データを活用し、MACBECE に追加した機能のうち原位置試験などの実規模で複合的な試験体系における緩衝材の力学挙動に着目した時の妥当性の検証と、過渡期の解析機能の高度化に向けた更なる課題の抽出を行った。その結果、二次元の平面ひずみ条件を基に構築された MACBECE では三次元的な形状に起因する応力分布やそれに伴う変形挙動を適切に評価できないといった課題が抽出されている（原子力機構、原子力環境整備促進・資金管理センター、2023）。今後、地層処分施設の閉鎖後長期の状態変化をより現実的に評価し、地質環境条件や設計オプション間の性能の比較を可能とするためには、MACBECE の三次元化が必要となる。

このような背景のもと、本検討では、MACBECE の三次元化を行い、三次元版 MACBECE のプロトタイプを作成するとともに、三次元化により生じる計算負荷の軽減の方法として、高速ソルバーや並列計算手法の導入等を検討し、MACBECE の更なる高度化に向けた方針を整理した。

(2) 実施内容

1) MACBECE の三次元版プロトタイプの作成

令和 5 年度は、三次元 FEM プログラムの骨格部分（ファイル入出力、剛性マトリクス構築、

ソルバー導入、可視化機能）の完成を優先し、まずは線形弾性体が確実に動作するプロトタイププログラムの開発を行った。そのため各材料の構成則は暫定的に線形弾性体とし、各種外部入力ファイルを用いた材料固有の解析機能の実装と検証を実施した。

三次元版 MACBECE プロトタイププログラムの開発は主に次の方針に基づき実施した。

- 三次元版 MACBECE のプロトタイプは、二次元版 MACBECE とは独立したコードとし、Fortran90 に準拠して作成した。
- 二次元版 MACBECE は 4 節点 4 角形アイソパラメトリック要素を用いている。そこで、三次元プロトタイププログラムでは、二次元版の自然な拡張である 8 節点 6 面体アイソパラメトリック要素を採用した。
- 三次元プロトタイププログラムでは、JSON 形式でデータを入力するように変更した。この形式ではキーワードとデータが対になっており、データの意味を理解し易くなっている。
- 節点・要素データ、化学的変遷指標データ、飽和度・間隙空気圧データ、温度データ等の外部ファイルは行内のデータの区切りはブランクかカンマとしており、テキスト形式や CSV 形式での記述が可能とした。
- 計算結果の出力に関して、三次元プロトタイププログラムでは解析ステップ毎に分割してVTKデータファイルを出力するようにした。VTKファイルは、ParaviewやMicroAVSといった可視化ソフトウェアで、別のプログラムによる変換をせず直接可視化することができる。

三次元プロトタイププログラムは表 2.3-5 に示す 5 つのソースコードファイルおよび表 2.3-6 に示す 2 つの外部ライブラリから構成されている。

表 2.3-5　三次元プロトタイププログラムのソースコードファイル一覧

ファイル名	内容
macbece2023.f90	プロトタイププログラムのメインルーチン
macbece_variables.f90	大域変数を格納するモジュール
macbece_io.f90	入出力関係のサブルーチン
macbece_solve.f90	計算関係のサブルーチン
macbece_utility.f90	汎用ユーティリティサブルーチン

表 2.3-6　三次元プロトタイププログラムで使用しているライブラリ

ライブラリ名	内容
JSON-Fortran 8.3.0	Fortran で利用可能な JSON パーサ
MUMPS 5.6.1	直接解法による行列計算ライブラリ

また、プログラムは以下に示す 3 重のループから構成されており、外側からステップコントロールのブロックに関するループ、ステップに関するループ、サブステップに関するループである。

①ステップコントロールのブロックに関するループ

JSON ファイルの StepControl キーで指定するデータで、そのブロックで計算するステップ数、サブステップ数を指定する。また、荷重や応力、化学変遷指標、飽和度、温度分布の初期化を行う。形状データ（節点、要素）や物性データの変更も可能である。

②ステップに関するループ

プログラムの中核部分で荷重や応力、化学変遷指標、飽和度、温度分布の更新、FEM 計算や計算結果のファイル出力を行う。

③サブステップに関するループ

計算精度の観点からステップを更に細かく分割したもので、ステップに関する処理のうち出力処理を除く計算部分を担当する。

三次元版 MACBECE プロトタイププログラムを Windows 環境で MS-DOS コマンドプロンプトから実行する場合、実行ディレクトリに移動し、下記のコマンドで実行する。

¥Macbece2023.exe␣ケース名

ここで、ケース名は拡張子「.json」を省略してもよい。計算結果の VTK ファイルを格納するディレクトリ（フォルダ）は計算実行前に事前に作成しておく必要があることに注意する。Linux 環境であっても MACBECE の実行方法や各種入出力ファイルに違いはない。誤操作を避けるため、入力ファイルのドラッグ＆ドロップによる起動には対応していない。

前述のとおり、計算結果は解析ステップ毎に分割して VTK データファイルとして出力される。VTK ファイルは、Paraview や MicroAVS といった可視化ソフトウェアで、別のプログラムによる変換をせず直接可視化することができる。さらに、これらの可視化プログラムを用いることで、選択した節点・要素の数値データをテキスト出力することも可能である。

今後、以下に示す各材料の非線形構成則を順次導入していく必要がある。

- 飽和ベントナイト系材料 ：関口・太田モデル、EC モデル、LC モデル
- セメント系材料 ：ひび割れモデル
- 岩盤要素 ：大久保モデル（クリープ・応力緩和）
- 腐食膨張（金属）要素 ：腐食（膨張・剛性低下）
- 不飽和ベントナイト系材料：Se-Hardening モデル
- ジョイント要素 ：滑り・剥離の表現

また、リスタート、掘削、埋め戻し、材料変更等の機能を MACBECE に導入していくことが必要である。さらに、すべての要素を 8 節点 6 面体アイソパラメトリック要素のみで構築するのは難しい場合があるため、将来的には 4 面体要素等の導入も必要になると考えられる。

2) MACBECE の三次元版プロトタイプの単純体系を対象とした検証解析

作成した三次元版 MACBECE プロトタイププログラムの、FEM プログラムとしての基本的な力学解析機能の検証を実施した。検証はすべて埋め戻し材の一要素モデルを用いて実施した。要素形状は 1 辺が 60mm の立方体である。図 2.3-8(a)と(b)に示すように、一軸圧縮試験と単純せん断試験を想定した一要素解析を実施した結果、三次元版 MACBECE プロトタイププログラム MACBECE による解析結果は、線形弾性体の理論式による計算結果と一致しており、線形弾性体の力学特性が正しく計算できることが確認できた（図 2.3-9、図 2.3-10）。

さらに、図 2.3-8(c)に示すように、物体力（要素荷重）、面荷重の載荷機能の検証を行った。一要素に対して、物体力は鉛直方向下向きに、面荷重は要素上面に鉛直方向下向きに加えた場合のひずみの計算を行った結果、理論式により算出されるひずみの値と一致しており、物体力と面荷重が正しく機能していることが確認できた（図 2.3-11）。

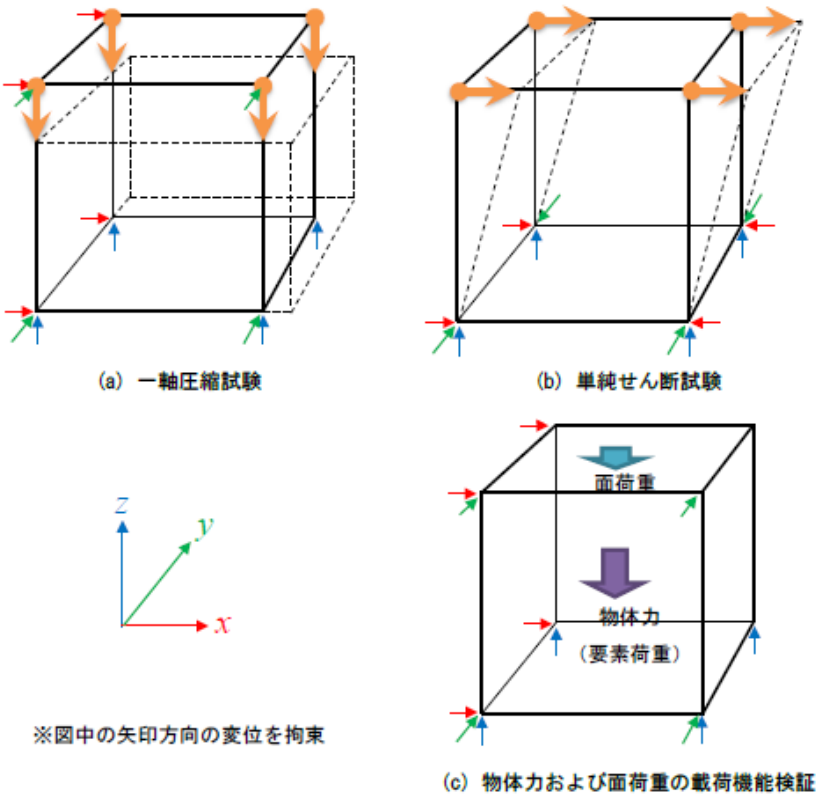
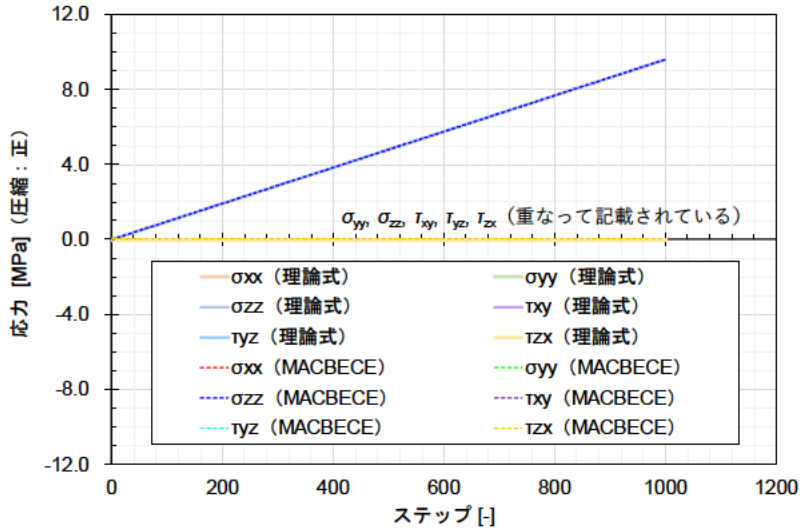
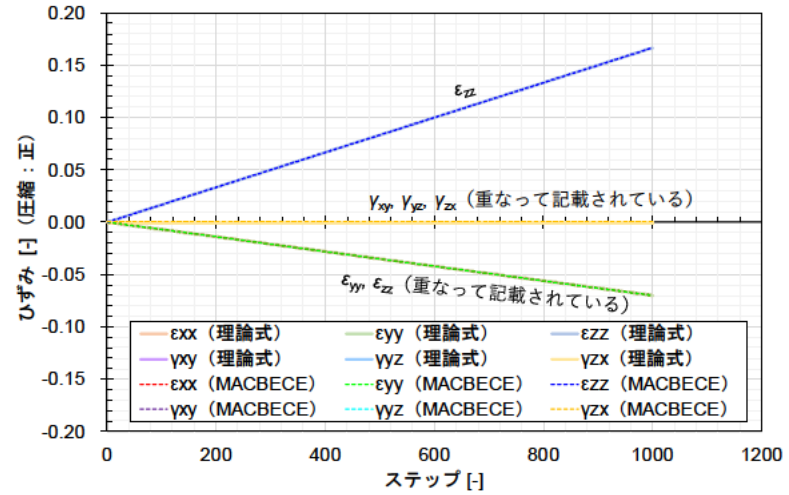


図 2.3-8　FEMの基本的な力学解析機能の検証慶安における境界条件設定



(a)応力変化



(b) ひずみ変化

図 2.3-9　一軸圧縮試験を想定した一要素検証解析結果

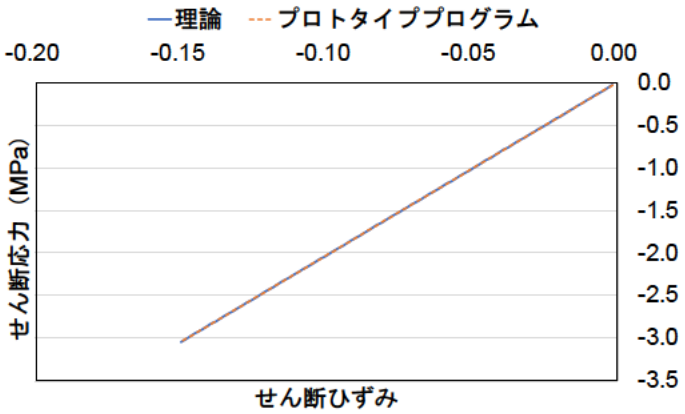
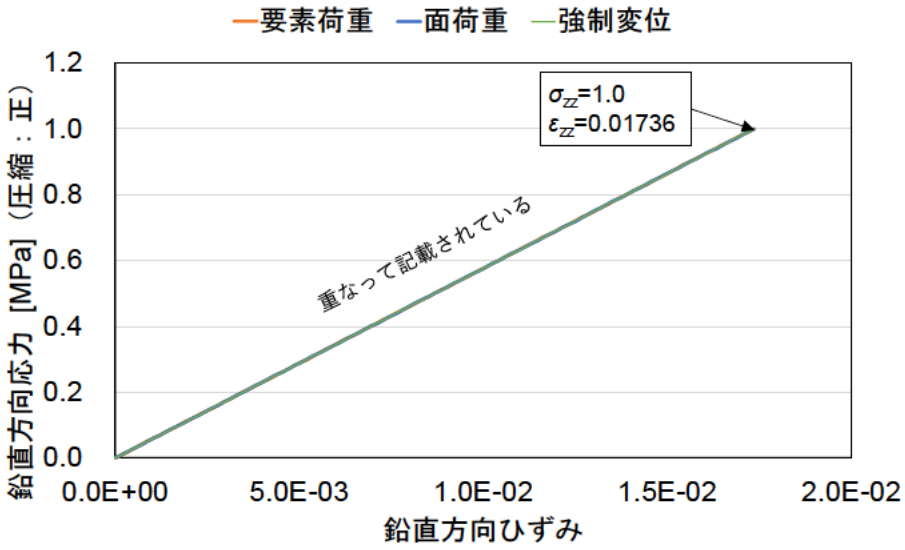
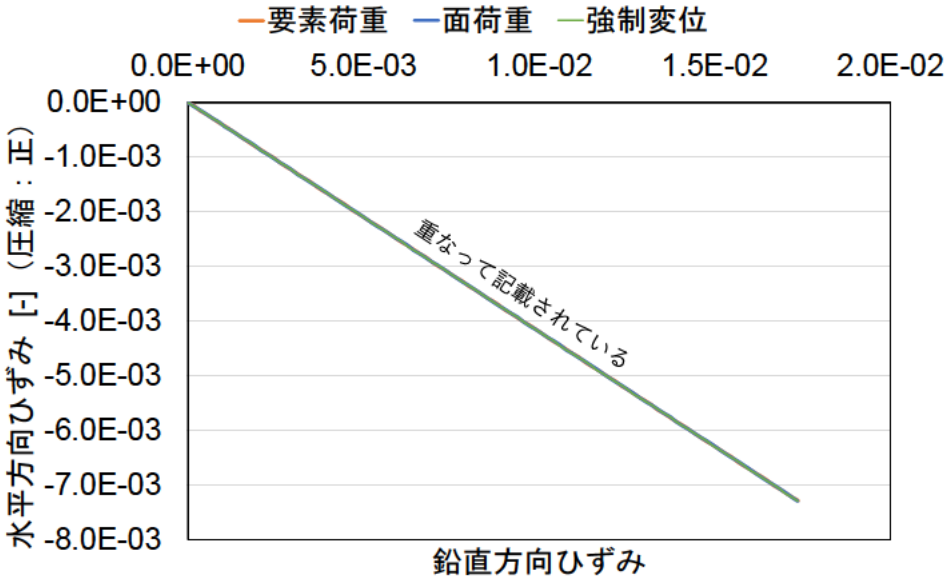


図 2.3-10　単純せん断試験を想定した一要素検証解析結果



(a) 鉛直方向ひずみと応力の関係



(b) 鉛直方向ひずみと水平方向ひずみの関係

図 2.3-11　物体力および面荷重の検証計算

続いて、外部ファイルから読み込んだ化学変遷指標、温度、飽和度データを活用した各材料固有の解析機能が正しく動作することを確認するため、要素シミュレーションによる検証解析を実施した。検証の対象となる材料は、飽和ベントナイト系材料、セメント系材料、金属系材料、不飽和ベントナイト系材料、埋め戻し材の 5 種類である。材料ごとに設定した解析条件を表 2.3-7 にまとめる。

検証対象の機能のうち、透水係数と強度・剛性、サクションを計算する機能は完全拘束条件で検証し、その他の膨潤圧、熱膨張・収縮の計算機能については、図 2.3-12 に示す完全拘束条件と自由変形条件で検証を行った。完全拘束条件では、各節点の全方向変位を固定する。自由変形条件では、xy、yz、zx 平面上に位置する節点の面外方向変位を固定し、面内方向変位を自由とする。

表 2.3-7 に従って、合計 27 の一要素解析を実施し、それぞれ理論計算結果との比較を行ったところ、すべてのケースにて解析結果と理論式による結果が一致しており、外部ファイルから読み込んだ化学変遷指標、温度、飽和度データを活用した各材料固有の解析機能が正しく動作することが確認できた。検証結果の一例として、飽和ベントナイト系材料の透水係数、不飽和ベントナイト系材料のサクション、金属材料の熱膨張・収縮、埋め戻し材の膨潤圧、セメント系材料の熱膨張・収縮、セメント系材料の強度・剛性低下の検証結果を図 2.3-13 に示す。

表 2.3-7　材料ごとに設定した解析条件一覧

Material Type	要素の種類	化学変遷	飽和度	温度
0	飽和ベントナイト系材料	透水係数	-	-
1	セメント系材料	強度・剛性低下 透水係数	-	熱膨張・収縮
3	腐食膨張要素	-	-	熱膨張・収縮
4	不飽和ベントナイト系材料	-	サクション 透水係数	-
5	埋め戻し材	-	膨潤圧 透水係数	-
備考	透水係数：完全拘束条件での理論式との比較 強度・剛性低下：完全拘束条件での理論式との比較 サクション：完全拘束条件での理論式との比較 膨潤圧：完全拘束条件での圧力の確認と自由変形条件での変形の検証 熱膨張・収縮：完全拘束条件での圧力の確認と自由変形条件での変形の検証			

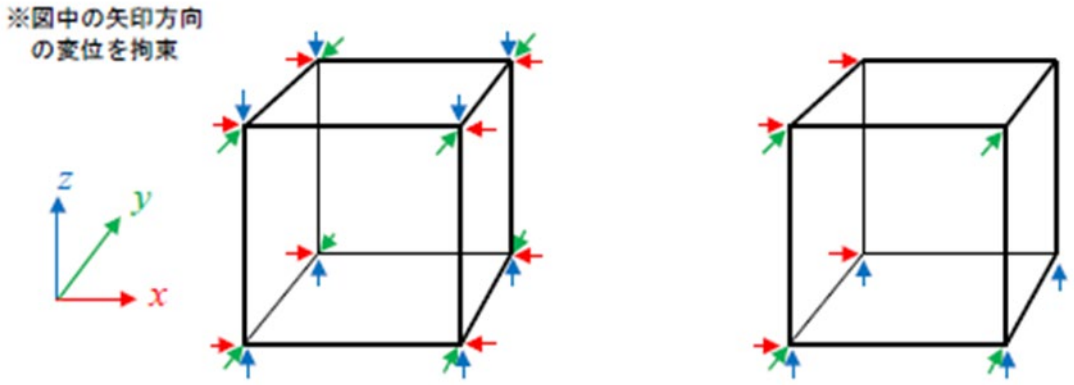


図 2.3-12　幾何学的境界条件の概念図

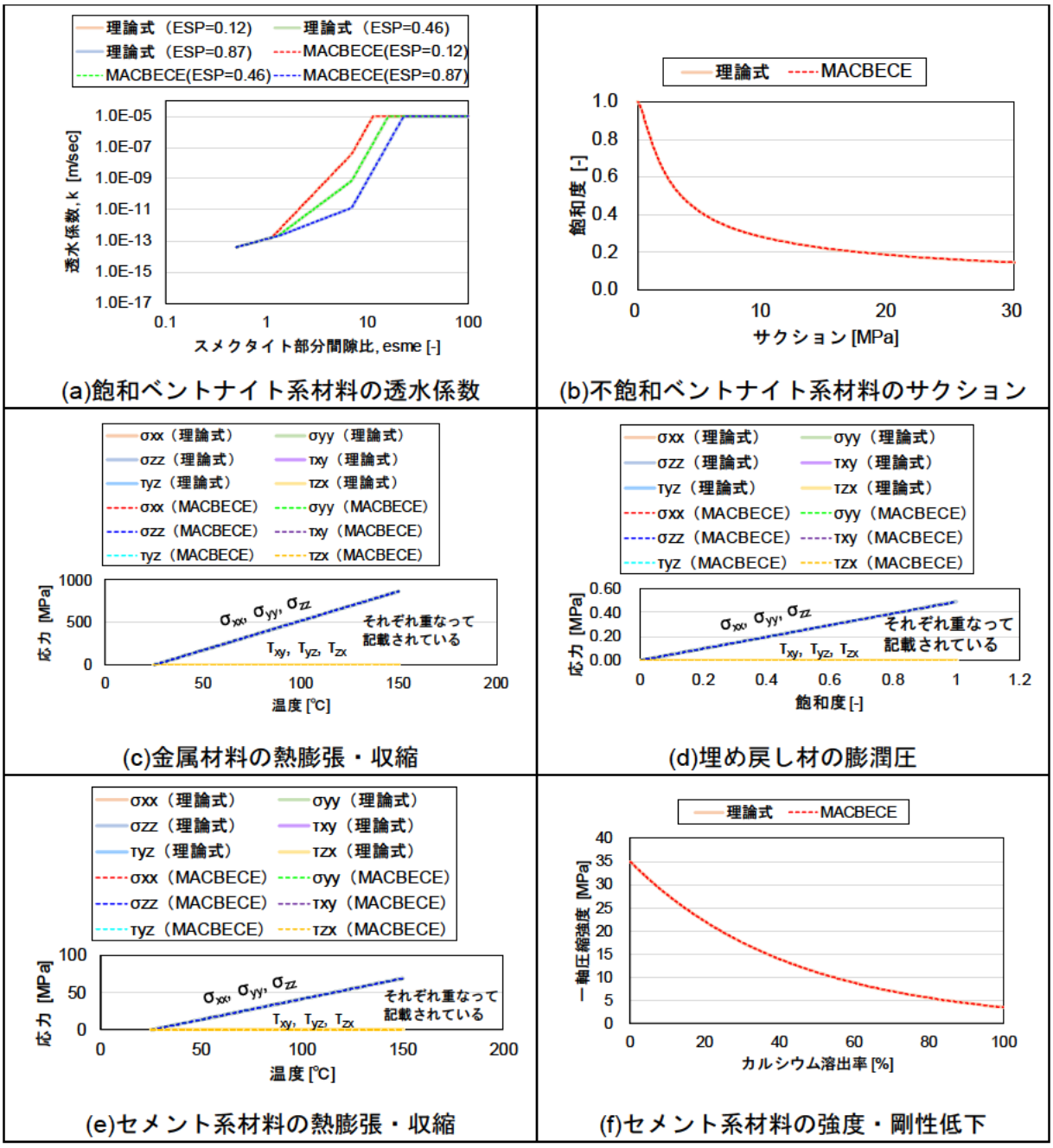


図 2.3-13　検証結果の一例

3)　MACBECE の 3 次元版プロトタイプの計算負荷軽減に向けた改良手順の整理

①　高速化：直接法と反復法

有限要素法で最も計算時間がかかる処理は行列解法であり、MACBECE に実装されている行列解法を高速化することが全体の高速化に最も寄与する。現時点の MACBECE に実装されている行列解法は直接法（MUMPS）に基づいているが、一般に行列解法には直接法と反復法の二種類の解法がある。

反復法は、適当な初期値から出発して、定型的な処理を繰り返して近似解を求め、最終的に収束したとみなせる近似解をもって解とする手法である。疎行列に対しては、fill-in を考える必要がない分だけ直接法に比べてメモリ消費量が非常に少ない。更に、条件数が小さい行列に対しては少ない反復回数で解が得られるため、計算時間も短く高速な行列解法である。

反復法の行列解法ライブラリである PETSc は、強力な前処理を適用することで元の行列の条件数を小さくするようなオプションを指定できる。また、PETSc は行列解法ライブラリというだけでなく、並列計算に対応した行列解法ライブラリという点が大きな特徴であり、並列化においても有効なライブラリとなっている。

さらに、PETSc は前処理として LU 分解や Cholesky 分解を選ぶことで実質的に直接法を適用できる。MACBECE では非線形な材料構成則を扱う必要があり、材料構成則の挙動次第では接線剛性行列の性質が劣化する可能性がある。そのような場合に実質的に直接法を適用できるならば、計算の安定性に寄与できる可能性が高まる。以上から、MACBECE の高速化として反復法を実装する場合に PETSc は有力な候補と考えられた。

② 並列化：PETSc と METIS の利用

三次元化した MACBECE を将来的に高速化・並列化する場合に、PETSc を用いて並列計算に対応した反復法の行列解法を適用するための実装方法を検討した。

並列計算は、データと処理のそれぞれを複数のプロセッサエレメント（PE）が分担することによって実現される。このうち、データ分割は FEM プログラムが複雑になることを避けるために前処理ツールで行うのがよいと考えられる。

METIS は領域分割のための外部ライブラリとして業界標準と言えるほど広く利用されており、MACBECE の並列化でもメッシュ分割には METIS を用いるのがよいと考えられた。METIS を用いてメッシュ分割を実施した後、分割されたメッシュデータから各プロセッサエレメントが担当する部分領域の入力データを再構成する。入力データの再構成では、各プロセッサエレメントが担当する部分領域の節点データを再構成するとともに、各プロセッサエレメントが担当する部分領域の節点と全体領域の節点との間の対応関係を定義する必要がある。

並列計算は、行列解法に関する処理を除けばほとんど逐次計算と同じである。前処理ツールによるデータ分割機能によって入力データが PE 毎に分割されるので、各 PE は自分が担当する部分領域があたかも全体領域であるかのように計算することになる。しかしながら、行列解法に関する処理だけは並列計算に固有の処理が必要となる。MACBECE に処理分割機能を実装するためには以下の処理が必要となる。

- ローカル節点番号とグローバル節点番号の対応関係を定義するインデックスを作成する
- 要素剛性マトリクスをアセンブルする時に PETSc を適用して全体マトリクスを組み上げる
- PETSc を適用した行列解法で求解する
- グローバルな解ベクトルから各 PE が担当する部分領域の解ベクトルを抽出する

一方、中規模解析向けに行列計算ライブラリとして MUMPS による並列計算（MPI 版 MUMPS）を適用することも可能と考えられた。

MPI 版 MUMPS の実装を含む MACBECE の高速化手法を難易度レベル順にならべると表 2.3-8 のようになる。L1 は FEM 計算等の箇所を、OpenMP を用いてスレッド並列化するものである。行列計算の並列化ほどの効果は無いが、他の高速化手法と併用できるという特徴がある。L2 の方法は入出力、FEM 計算等の行列計算以外の箇所は逐次処理プログラムのままとし、行列計算の箇所だけ MPI 版 MUMPS に変更する方法である。L3 は行列計算以外の入出力や FEM 計算にも MPI 版 MUMPS を適用する方法で、プログラム全体が並列化されるので並列効率は高くなるが、実装に要する工数も多くなる。L4 は PETSc を用いる方法である。

今後、将来的な解析の対象となる規模に応じて、どのような並列化を実装していくかを決定していく必要である。

表 2.3-8　MACBECE の並列化手法

No.	実施内容	工数	特徴（○：長所 ×：短所）
L1	OpenMP によるスレッド並列化	小	○工数が少ない ○メニーコア CPU では効率がよい ○L2～L4 の高速化手法と併用できる ×行列計算を高速化しないので並列効率は低い
L2	行列計算のみ MUMPS で MPI 並列化	中	○比較的少ない工数で行列計算を並列化できる ○入出力や FEM 計算など行列計算以外の箇所は逐次版をそのまま利用できる ×行列計算以外では子プロセスがアイドル状態になる
L3	領域分割法による MPI 並列化（行列計算は MUMPS）	大	○行列計算以外の箇所も並列計算できる ○行列計算以外の箇所は L4 と共通化できる ×期待できる性能向上に対し工数が多い ×L4 との併用が望ましい
L4	領域分割法による MPI 並列化（行列計算は PETSc）	大	○大規模問題にも適用できる ×工数が多い ×反復法なので収束しない問題もあり得る

(3) 成果と今後の課題

本検討では、MACBECE の三次元化を行い、三次元版 MACBECE のプロトタイプを作成した。三次元版 MACBECE のプロトタイプの作成においては、三次元 FEM プログラムの骨格部分（ファイル入出力、剛性マトリクス構築、ソルバー導入、可視化機能）の完成を優先し、まずは線形弾性体が確実に動作するプロトタイププログラムの開発を行った。そのため各材料の構成則は暫定的に線形弾性体とし、各種外部入力ファイルを用いた材料固有の解析機能の実装と検証を実施した。また、三次元化により生じる計算負荷の軽減の方法として、反復法の高速ソルバーPETSc や、領域分割の外部ライブラリ METIS の導入による並列化等の今後の開発方針を整理した。

今後は、以下に示す各材料の非線形構成則を順次導入していく必要がある。

- 飽和ベントナイト系材料 ：関口・太田モデル、EC モデル、LC モデル
- セメント系材料 ：ひび割れモデル
- 岩盤要素 ：大久保モデル（クリープ・応力緩和）
- 腐食膨張（金属）要素 ：腐食（膨張・剛性低下）
- 不飽和ベントナイト系材料：Se-Hardening モデル
- ジョイント要素 ：滑り・剥離の表現

また、リスタート、掘削、埋め戻し、材料変更等の機能を MACBECE に導入していくとともに、すべての要素を 8 節点 6 面体アイソパラメトリック要素のみで構築するのは難しい場合があるため、将来的には 4 面体要素等の導入も必要になると考えられる。さらに、三次元化により生じる計算負荷の軽減の方法として、高速ソルバーの導入や、並列化を進めていく予定である。

2.3.3. 人工バリア性能確認試験の遠心力加速模型実験による長期現象理解と数値解析の高度化

(1) 背景と目的

1) 背景

地層処分システムの処分施設の建設・操業期間から処分施設閉鎖後直後の過渡期におけるニアフィールドを構成する材料間および諸現象間の相互作用などを考慮したニアフィールドの状態変遷をより現実的に評価するため、本事業においてその技術開発が進められている。特に人工バリアである緩衝材の検討では、主に再冠水過程における膨潤挙動などにおけるその機能を低下させる要因について検討されている。緩衝材の機能を低下させるもう一つの要因として、オーバーパックの浮上や沈降による厚さの変化、孔外への膨出による密度低下など、緩衝材の変形に因るものがある。さらに実処分環境での変形を考慮するためには人工バリア周辺の岩盤も対象に含める必要がある。

人工バリアの長期挙動を評価する手法として、実験による現象理解、数値解析による現象予測などが挙げられる。実験的手法では、実際に生じた現象を評価することが可能である一方で、数百年、数千年単位の長期の現象を直接評価することが困難である。そのため長期挙動評価はモデル化や数値解析が必要であるが、解析的検討における長期挙動評価の信頼性の向上には、解析手法の妥当性を確認する実験的な裏付けが必要である。

令和 5 年 3 月に策定された「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）」に示された、上述したような内容を含む課題解決に向けて、処分場近傍の領域（ニアフィールド）を対象とした、廃棄体定置後の過渡的な時期から閉鎖後長期に至る期間の地層処分システムの構成要素間および諸現象間の相互作用を理解するために、これらを考慮した原位置試験、室内試験、数値解析手法の検討を通じ、地層処分事業における概要調査から精密調査段階に有用となる調査・評価技術を開発することが求められている。

日本原子力研究開発機構の幌延深地層研究センターで「人工バリア性能確認試験」が実施されている。人工バリア性能確認試験は国内唯一の原位置実規模実証試験であり、10 年程度の期間、その挙動を把握するための稠密計測がなされている。また、2022 年度より、幌延国際共同研究プロジェクト（HIP）として、人工バリア性能確認試験の解体調査により緩衝材の飽和度や乾燥密度などの取得が予定さている。これらと解体前まで取得されるデータと合わせ、熱－水理―力学―化学（THMC）数値解析が実施される計画である。

数十～数百年程度に生じる過渡期の THMC 連成現象の評価は、最終的には、数値解析の活用により評価される。一方で、解析結果は実験結果による妥当性確認が必須である。原位置実規模実証試験である人工バリア性能確認試験の稠密計測結果は再冠水期間の諸現象の確認に極めて有効である一方、評価すべき期間と比べ短い。このため、冠水までの数百年に生じる現象の評価のため、加速実験である遠心力模型実験も活用することが期待される。

相似則により数百年単位の長期挙動の推定が見込める遠心力模型実験の地層処分への適用に向けて、これまでに Modeling of models（縮尺と遠心加速度を変化させ同じ挙動を示すかの確認）による現象成立性（緩衝材の圧密挙動・膨潤圧の経時変化、オーバーパックの沈下挙動）が確認されている（例えば、中村・田中, 2004; 2006; 2009; 西本ほか, 2012; 2014; Nishimoto et al., 2016、など）。一方、Modeling of models による成立性は比較的単純な境界や均質材料での確認事例がほとんどであり、実処分環境で想定される材料構成の複雑さや環境条件の不均一性に関する課題、更に、模型容器に収納される遠心力模型実験と原位置（の挙動）といった境界条件が異なる中での比較の難しさといった課題が認識されている。このため、Modeling of prototype（実物大試験と縮尺模型を用いた遠心実験で同じ挙動を示すかの確認）による実験の妥当性確認が重要となる。このため、人工バリア性能確認試験という「実物」の縮尺模型を用い、環境条件などを同等にした

遠心力模型実験を実施しすることで、より確度の高い長期挙動を推定することが望まれている。

2)　目的

本研究では、幌延国際共同研究プロジェクト（HIP）に参画し、原位置実規模実証試験である幌延人工バリア性能確認試験を対象に、その期間よりも長い数百年相当の挙動を推定する遠心力模型実験と、遠心力模型実験および人工バリア性能確認試験の再現解析を実施する。

本研究の目的は、次の通りである。すなわち、実規模試験で稠密計測がなされる幌延人工バリア性能確認試験､縮尺模型であるが加速実験による長期相当の挙動が評価可能な遠心力模型実験、それらを対象とした数値解析を実施することで、ニアフィールドの過渡期で生じる長期挙動を切れ目なく評価する。これにより、解析手法の高度化、長期予測の信頼性向上に資する。

(2)　実施内容

3)　実施計画の策定

本研究は、原則、幌延国際共同研究プロジェクト（HIP）のスケジュールに則り、研究計画を策定する（図 2.3-14）。

HIP では、2026 年度からの幌延人工バリア性能確認試験（幌延 EBS 試験）の解体開始に向けて、2024 年度までに、試験データの準備（C-1）、解体計画の策定（C-2）と解析コードの準備（C-3）を行う。2025 年度から EBS 試験の予測解析を実施する（C-4）。予測解析では幌延 EBS 試験で計測されているデータを活用し、解析結果との比較検討を行う。2026 年度に幌延 EBS 試験の解体が開始され（C-5）、緩衝材の密度や水分量等の結果が出る 2027 年度以降にそれらのデータも含めた再解析（C-6）が行われる計画である。

HIP の計画に従い、本研究の計画を図 2.3-15 に示す。本年度（R5）では、試験・解析計画の策定を行う（本項目）。また R6 以降に行う数値解析に入力するパラメータの整理を行う。必要に応じてデータ取得も実施する。R6 では､R7 以降に行う遠心力模型実験のための計測確認試験と、数値解析の感度を把握するための試解析を行う。R7-9 では、幌延 EBS 試験の縮尺模型を用いた遠心力模型実験の実施と、EBS 試験および遠心力模型実験の数値解析を実施していく計画である。

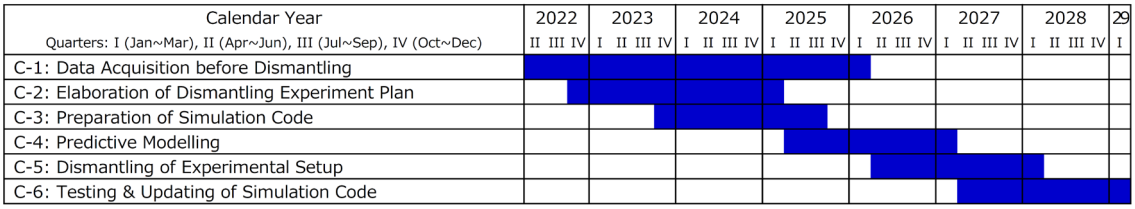


図 2.3-14　幌延国際共同研究プロジェクトのスケジュール

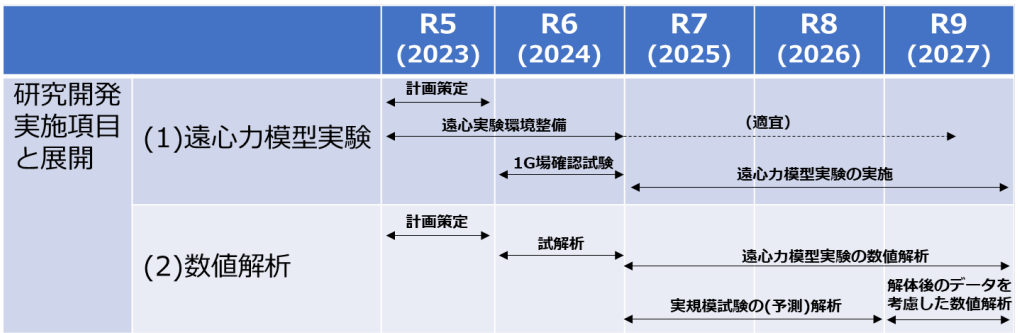


図 2.3-15　本研究の計画

4) 解析パラメータの整理および物性値測定

① 使用する解析コードの概要

本研究では、遠心力模型実験の再現解析（澤田ほか, 2012; Sawada et al., 2017）を実施した実績を持つ、澤田ほか（2006）が開発した THM 連成解析が可能な有限要素プログラム、「放射性廃棄物地層処分における地下空洞長期安定性解析プログラム（LOSTUF)」を使用する。

このプログラムでは、地盤を材料粒子骨格と水・ガスで満たされた空隙で構成される多相システムであり、地下水の連続式、エネルギー保存則、力のつり合い式と各種構成式（フーリエ則、ダルシ―則、フィック則など）から支配方程式が導かれている。温度、間隙水圧、変位を未知数として解く。間隙ガス圧については一定としているが、水蒸気の密度勾配による拡散挙動を考慮している。ベントナイトの膨潤挙動については、作用している平均応力・間隙水圧での最大膨潤ひずみを評価し､それに相当する節点力をベントナイト要素の節点に与えることで表現している。

② THM 連成の支配方程式

LOSTUF では、地盤を粒子骨格と水・空気で満たされた空隙で構成される多相システムとして取り扱い、地下水の連続式、エネルギーの保存則、力の釣り合い式と、応力－ひずみ関係、透水挙動に関するダルシー則、熱伝導に関するフーリエ則、水蒸気の拡散挙動に関するフィック則等の各種構成則から導かれた支配方程式を用いている。間隙ガス圧は一定で大気圧に等しいとしている。支配方程式は、Rutqvist et al. (2001)を参考に導出した。以下にその支配方程式について簡単に記す。以下の解説で「地盤」は固相、液相、気相を含めた多孔質媒体の系全体を表している。式の導出過程の詳細については澤田ほか（2006）を参照されたい。

地下水の連続式から以下の式が導かれる。

$$\rho_l S_l \frac{\partial(\nabla\cdot\mathbf{u})}{\partial t} + \{\rho_{l0}\phi S_l\beta_{Pl} + (\rho_l-\rho_v)C_{lP} + \rho_l C_{vP}\}\frac{\partial P_l}{\partial t} - (\rho_{l0}\phi S_l\beta_{Tl} - \rho_l C_{vT})\frac{\partial T}{\partial t}$$
$$+\nabla\cdot\left\{\left(-\rho_l\frac{\mathbf{k}k_{rl}}{\mu_l} - \rho_l D_{Pv}\mathbf{I}\right)\nabla P_l\right\} + \nabla\cdot\{(-\rho_l D_{Tv}\mathbf{I})\nabla T\} = Q_B + \nabla\cdot\left(\rho_l\frac{\mathbf{k}k_{rl}}{\mu_l}\mathbf{g}\right) \quad \text{式(2.3-13)}$$

ここで、ρ_lは水の密度、ρ_vは水蒸気の密度、S_lは飽和度、ρ_{l0}は初期条件の水の密度、ϕは間隙率、β_{Pl}は水の圧縮係数、β_{Tl}は水の熱膨張係数、$\mathbf{k}$は固有透過度テンソル、k_{rl}は相対透水係数、μ_lは水の粘性係数、$\mathbf{I}$は単位テンソル、Q_Bは水のソース項、$\mathbf{g}$は重力加速度ベクトルである。未知数は変位ベクトル$\mathbf{u}$、間隙水圧P_l、温度Tであり、変位ベクトル$\mathbf{u}$により、ひずみテンソル$\boldsymbol{\varepsilon}$および体積ひずみε_Vが$\boldsymbol{\varepsilon} = 0.5(\nabla\mathbf{u} + (\nabla\mathbf{u})^{tr})$、$\varepsilon_V = \nabla\cdot\mathbf{u}$と定義される。なお、不飽和状態において、サクションsは間隙水圧P_lと間隙ガス圧P_gにより、

$$s = P_g - P_l \quad \text{式(2.3-14)}$$

と定義される。さらに LOSTUF では間隙ガス圧に大気圧を仮定しているので、$s = -P_l$となる。

また、C_{lP}は水分特性曲線（飽和度S_lとサクションsの関係を表す曲線）から算出される係数で比水分容量と呼ばれる。C_{vP}、C_{vT}はそれぞれ以下のように書ける。

$$C_{vP} = \frac{\phi S_g \rho_v}{\rho_l^2 R_v T} \quad \text{式(2.3-15)}$$

$$C_{vT} = \frac{\phi S_g}{\rho_l}\frac{\partial \rho_{vS}}{\partial T}RH - \frac{\phi S_g P_l}{\rho_l^2 R_v T^2} \quad \text{式(2.3-16)}$$

ここで、S_gは空隙中の気体の体積占有率（$=1-S_l$）、R_vは水蒸気の比気体定数（＝461.5 J/kg K）、ρ_{vS}は飽和水蒸気密度（温度の関数）、RHは相対湿度である。

D_{Pv}およびD_{Tv}は多孔質媒体中における等温下での水蒸気拡散係数、温度勾配による水蒸気拡散係数であり、水蒸気の拡散を表すフィック則を展開することで得られる。水蒸気の流束q_{rv}は、間

隙ガス圧が一定であるという仮定のもと、以下のフィック則で表せる。

$$q_{rv} = -D_v I \nabla \rho_v \quad \text{式(2.3-17)}$$

ここで、D_vは水蒸気の分散係数であり、

$$D_v = \phi S_g \tau D_m \quad \text{式(2.3-18)}$$

と書ける。τは屈曲度を表す。D_mは大気圧下での水蒸気の分子拡散係数であり、温度の関数として以下の式を用いる。

$$D_m(\mathrm{m^2/s}) = 2.16 \times 10^{-5}(T/273)^{1.8} \quad \text{式(2.3-19)}$$

水蒸気の密度ρ_vは以下のように書ける。

$$\rho_v = \rho_{vS}(T)RH = \rho_{vS} exp\left(\frac{P_l}{\rho_l R_v T}\right) \quad \text{式(2.3-20)}$$

ここで、ρ_{vS}は飽和水蒸気密度であり温度の関数である。式(2.3-18)内の水蒸気密度の勾配は式(2.3-19)を用いて次のように展開できる。

$$\mathbf{q}_{rv} = -\rho_l(D_{Pv}\mathbf{I}\nabla P_l + D_{Tv}\mathbf{I}\nabla T) \quad \text{式(2.3-21)}$$

ここで、

$$D_{Pv} = \frac{D_v \rho_v}{\rho_l^2 R_v T} \quad \text{式(2.3-22)}$$

$$D_{Tv} = D_v\left(\frac{RH}{\rho_l}\frac{\partial \rho_{vS}}{\partial T} - \frac{\rho_v P_l}{\rho_l^2 R_v T^2}\right) \quad \text{式(2.3-23)}$$

である。

式(2.3-13)において、左辺の第 1 項は多孔質体の骨格変化、第 2 項は飽和度の変化、第 3 項は温度変化による間隙流体の密度変化、第 4 項は水分移動（ダルシー則およびフィック則からの展開）、第 5 項は温度勾配による水分移動（フィック則からの展開）を表す。

エネルギー保存則からは次の支配方程式が導かれる。

$$(1-\phi)3K_D\beta_{TD}T\frac{\partial(\nabla\cdot\mathbf{u})}{\partial t} + (\rho c)_m\frac{\partial T}{\partial t} - \nabla\cdot\left\{T\left(\frac{\beta_{Tl}}{\beta_{Pl}}\right)\frac{\mathbf{k}k_{rl}}{\mu_l} + \rho_l L D_{Pv}\mathbf{I}\right\}\nabla P_l - \nabla \cdot (\lambda_m \mathbf{I}\nabla T) + (c_l\mathbf{q}_l)\cdot\nabla T = Q_{TB} \quad \text{式(2.3-24)}$$

ここで、K_Dは固相の体積弾性係数（排水条件）、β_{TD}は固相の熱膨張係数（排水条件）、Lは単位体積あたりの水蒸気の潜熱、$\mathbf{q}_l$は流束ベクトル、Q_{TB}は熱量のソース項である。λ_m、$(\rho c)_m$はそれぞれ地盤の熱伝導率、熱容量であり、次式で求まる。

$$\lambda_m = S_l\lambda_{sat} + (1-S_l)\lambda_{dry} \quad \text{式(2.3-25)}$$

$$(\rho c)_m = \phi S_l \rho_l c_l + (1-\phi)\rho_s c_s \quad \text{式(2.3-26)}$$

ここで、λ_{sat}は飽和時の地盤の熱伝導率、λ_{dry}は絶乾時の地盤の熱伝導率、c_lは水の比熱、c_sは固相の比熱、ρ_sは固相の密度である。

式(2.3-22)において、左辺の第 1 項は多孔質体の変形による可逆的な内部エネルギーの変化、第 2 項は内部エネルギーの変化、第 3 項は間隙水圧の変化および水蒸気に相変化することによる内部エネルギーの変化、第 4 項は熱伝導による内部エネルギーの変化（フーリエ則）、第 5 項は熱移流による内部エネルギーの変化を表す。

次に応力の釣り合い式について述べる。有効応力を次式で定義する。

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}' - \mathbf{I}\bar{P} \quad \text{式(2.3-27)}$$

ここで、$\boldsymbol{\sigma}$は応力テンソル、$\boldsymbol{\sigma}'$は有効応力テンソル、$\bar{P}$は間隙圧である。ここでは、間隙ガス圧が大気圧に等しいとしているので、

$$\bar{P} = \chi P_l + (1-\chi)P_g = \chi P_l \quad \text{式(2.3-28)}$$

となる。χは Bishop の有効応力パラメータであり、通常飽和度の関数として定義する。本研究で

は、飽和時$\chi = 1$、不飽和時$\chi = 0$を仮定する。模型実験に用いる緩衝材、岩石は非常に大きなサクションを持つ材料であるため、サクションを独立な応力成分とした。不飽和段階においてサクションの減少に伴って進行するベントナイトの膨潤については、後述するように応力ひずみ関係とは別に等価な節点力を作用させることでモデル化する。この仮定により、不飽和時の間隙圧は大気圧に等しくなる。この有効応力を用いて力学構成式は以下のように書ける。

$$d\boldsymbol{\sigma}' = \mathbf{D}:(d\boldsymbol{\varepsilon} - d\boldsymbol{\varepsilon}_T) = \mathbf{D}:(d\boldsymbol{\varepsilon} - \mathbf{I}\beta_{TD}dT) \qquad \text{式(2.3-29)}$$

ここで、**D**は固相の剛性テンソルで、等方線形弾性体を仮定する場合はヤング率Eとポアソン比νで定義できる。

また、式(2.3-25)および式(2.3-27)を応力の釣り合い式に代入することで以下の支配方程式が得られる。

$$\nabla\cdot\left\{\mathbf{D}:\frac{\partial\boldsymbol{\varepsilon}}{\partial t}\right\} + \nabla\cdot\left(-\mathbf{I}\chi\frac{\partial P_l}{\partial t}\right) + \nabla\cdot\left\{(-\mathbf{D}:\mathbf{I}\beta_{TD})\frac{\partial T}{\partial t}\right\} = \frac{\partial}{\partial t}(\rho_m\mathbf{g}) + \mathbf{F}_B \qquad \text{式(2.3-30)}$$

ρ_mは地盤の湿潤密度、$\mathbf{F}_B$は外力ベクトルである。膨潤については外力項を与えることでその効果を導入する。次小節でその取り扱いについて述べる。

式(2.3-28)において、左辺の第 1 項は弾性応力、第 2 項は間隙水圧、第 3 項は熱応力を表す。

③　緩衝材の膨潤モデル

LOSTUF に導入されている緩衝材の膨潤挙動モデルについて説明する。緩衝材の膨潤圧は、有効粘土密度の関数として表される（さらに同じ種類のベントナイト単体であれば、乾燥密度や間隙率の関数として表すことができる）。ある有効粘土密度の緩衝材について、与えられた平均応力σ_mにおける最大膨潤ひずみε_{smax}が得られる。その関係を式で表すと以下のようになる。

$$\sigma_m = f(\varepsilon_{smax}) \qquad \text{式(2.3-31)}$$

緩衝材の膨潤ひずみは外力項として取り扱う。水が浸透した要素（間隙水圧が上昇した要素）に対して膨潤計算を実施する（以下、膨潤要素と称す）。式(2.3-29)をグラフで表したものが図 2.3-16 の左上図である。これを用いて、膨潤要素に作用している応力状態から、その応力状態に対する飽和時の最大膨潤ひずみ$\varepsilon_{\mathrm{smax}}$を式(2.3-29)により算出する。また、間隙水圧の上昇（負値～ゼロ、サクションの低下）とともに膨潤が進行するとして、不飽和状態での最大膨潤ひずみω_{smax}を次式より算出する。

$$\omega_{\mathrm{smax}} = \varepsilon_{\mathrm{smax}}\left(\frac{|P_l - P_{l0}|}{|P_{l0}|}\right)^l \qquad \text{式(2.3-32)}$$

ここで、P_lは間隙水圧、P_{l0}は基準となる間隙水圧（負値）、lは不飽和時の膨潤の進行に関するパラメータである。これまでは$l = 1$を仮定し、間隙水圧の上昇量と線形にω_{smax}の値が決めるようにしてきた。算出された最大膨潤ひずみω_{smax}を発生させるための等価な節点力$\mathbf{F}_p$を、膨潤要素を構成する節点に作用させ、変形、応力を計算する。計算された体積ひずみを累積膨潤ひずみε_{aw}とする。

$$\mathbf{F}_p = \int \mathbf{B}^T\mathbf{D}(\omega_{smax} - \varepsilon_{aw})\mathbf{I}dV \qquad \text{式(2.3-33)}$$

ここで、**B**はひずみ－変位マトリクスである。最大膨潤ひずみが累積膨潤ひずみよりも大きければその差に相当するひずみを発生させるための等価な節点力を再び節点に作用させ、変形、応力を計算する。計算されたひずみを累積膨潤ひずみに加算する。以後、作用している応力での最大膨潤ひずみが累積膨潤ひずみを下回るまで膨潤計算を繰り返し、全膨潤要素において膨潤計算が終了したら次ステップへ移行する。この膨潤計算のフローおよび概念図を図 2.3-16 に示す。この膨潤計算の繰り返し中は温度および間隙水圧は固定している。前ステップからの間隙水圧の上

昇がない場合、飽和後、作用している平均応力時の最大膨潤ひずみが既に発生している場合、膨潤は発生しない。

式(2.3-29)、図 2.3-16 左上図の関係については実験データから設定可能であるが、クニゲル V1 に対しては拡散二重層理論に基づく膨潤評価式（小峯・緒方，1999）から設定してきた。

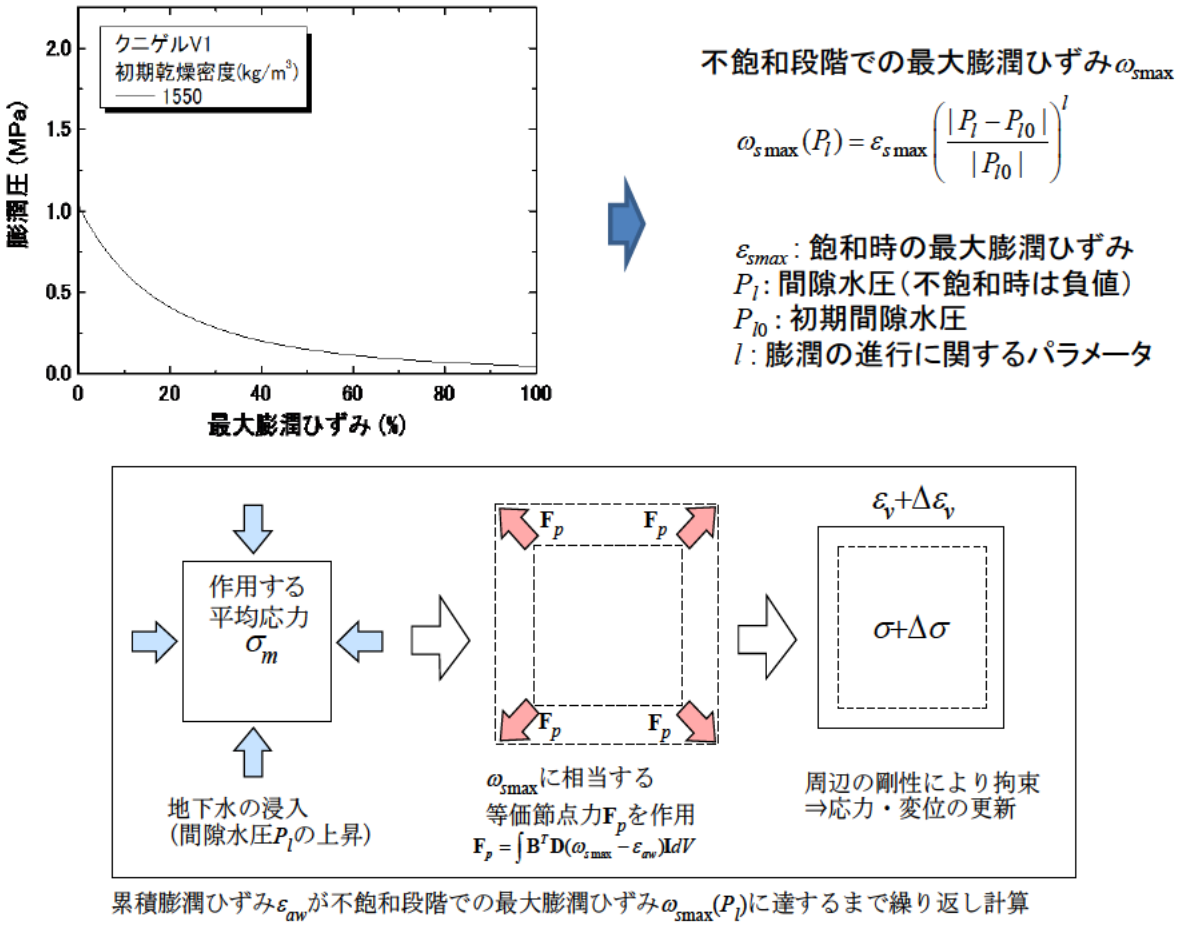


図 2.3-16　LOSTUFにおける緩衝材膨潤モデル

④　THM 連成ジョイント要素

緩衝材とオーバーパックや岩盤との間は接触面であり、ジョイント要素など不連続接触を取り扱える要素を用いてこれを表現する必要がある。地盤や岩盤と構造物の隙間や、断層面など弱層のモデル化に用いられる一般のジョイント要素では、THM 連成の現象は取り扱わないが、本研究におけるニアフィールドの長期挙動評価ではこれを考慮する必要がある。そこで、LOSTUF では熱・水と力学の相互作用を考慮した THM 連成ジョイント要素を導入している。この要素は、Zienkiewicz らによって導入されたジョイント要素と同様の定式化となっており、極薄いアイソパラメトリック要素に対して、前述の THM 連成系の支配方程式に基づく構成式を適用している。なお、ジョイント要素は本来、接触面をモデル化するものであることから、弾性体のポアソン効果がないことや、間隙率や熱膨張などの取り扱いについて、ソリッド要素とは幾つかの違いがある。しかし、基本的には剛性だけでなく水や熱の流れに対し、異方性の特性を設定可能なソリッド要素として導入されている。

⑤　LOSTUF に必要なパラメータ

LOSTUF に必要となる熱・水関係の解析パラメータを表 2.3-9 に示す。解析領域を構成する各材料について決定する。力学モデルは等方線形弾性体として、力学関係のパラメータを表 2.3-10 に示す。膨潤評価式のパラメータについては小峯・緒方（1999）を参照されたい。なお、等方線形弾性体のほかにドラッガー・プラガー降伏基準バイリニアモデル、カムクレイモデル、関口ー太田モデル、軟岩クリープモデル（澤田・岡田、2005）が LOSTUF に導入されている。

表 2.3-9　LOSTUFに必要な解析パラメーター覧（熱・水）

記号	パラメータ	単位	試験による取得方法
μ_l	水の粘性係数	Pa s	物理量
ρ_l	水の密度	kg/m^3	物理量
ρ_v	水蒸気の密度	kg/m^3	物理量
ρ_{vS}	飽和水蒸気密度	kg/m^3	物理量
c_l	水の比熱	J/kg K	物理量
β_{lP}	水の圧縮係数	Pa^{-1}	物理量
β_{lT}	水の熱膨張係数	K^{-1}	物理量
L	水蒸気の潜熱	J/kg	物理量
R_v	比気体定数	J/kg K	物理量
D_m	水蒸気の分子拡散係数	m^2/s	物理量
ρ_s	固相の密度	kg/m^3	重量分析など
ϕ	間隙率	-	水銀圧入法，重量分析など
$\mathbf{k}$	固有透過度	m^2	透水試験
k_{rl}	相対透水係数	-	三乗則, van Genuchten式（サイクロメータ法などの保水力試験）
$C_{lP}(=\rho_l g dS_l/dP_l)$	比水分容量	s/m^2	水分特性曲線,van Genuchten式（サイクロメータ法などの保水力試験）
τ	屈曲度	-	加熱浸透試験の解析による推定
λ_{sat}	熱伝導率（飽和）	W/mK	熱伝導試験
λ_{dry}	熱伝導率（乾燥）	W/mK	熱伝導試験
c_s	固相の比熱	J/kg K	熱拡散試験、比熱測定試験など
β_{TD}	固相の熱膨張係数	K^{-1}	線膨張係数の測定など

表 2.3-10　LOSTUF に必要な解析パラメーター覧（力学）

記号	パラメータ	単位	試験による取得方法
等方線形弾性体			
E	ヤング率	Pa	一軸圧縮試験，三軸圧縮試験
ν	ポアソン比	-	一軸圧縮試験，三軸圧縮試験
K_D	体積弾性率	Pa	E, nより換算
χ	有効応力パラメータ	-	0（不飽和），1（飽和）あるいはc=Sl
膨潤計算パラメータ			
$\varepsilon_{s\max}(\sigma_m)$	膨潤特性	-	膨潤圧試験，膨潤変形試験，膨潤評価式
l	膨潤進行パラメータ	-	膨潤圧試験，膨潤変形試験の進行過程

⑥　LOSTUF で用いる解析パラメータ

HIP において 2025 年度から EBS 試験の予測解析を実施する（C-4）。この時には、LOSTUF に入力するパラメータは基本的には HIP で示される値を採用することとなる。ここで、2.3.1 項で開発が進められている MACBECE や、THAEMS、Couplys などの他の解析プログラムも HIP における予測解析に使用される予定である。このため、これらのプログラムとの解析結果の比較検討を鑑み、同様のパラメータ（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022; 鈴木ほか, 2023）をベースにして LOSTUF の入力パラメータとして設定する。

表 2.3-11　Couplysに用いられた解析用物性値（鈴木ほか, 2023）

パラメータ	単位	岩盤	砂層	支保 路盤 プラグ	埋め戻し材 （下側）	埋め戻し材 （上側）	緩衝材	模擬オーバーパック
真密度	Mg/m^3	2.454	2.51	2.620	2.593	2.593	2.680	7.800
乾燥密度	Mg/m^3	1.354	1.4	2.280	1.200	1.400	1.800	－
初期空隙率	－	0.448	0.442	0.130	0.538	0.460	0.328	－
初期間隙水飽和度	－	1.00	1.00	1.00	0.80	0.91	0.58	－
熱伝導率	W/mK	1.23	2.04	2.56	式(4-1)		式(4-3)	53.0
比熱	kJ/kgK	1.27	1.28	1.05	式(4-2)		式(3-8)	0.46
固有透過度	m^2	1.33×10^{-15}	1.00×10^{-13}	9.10×10^{-18}	3.00×10^{-18}	1.76×10^{-19}	表 4-3 参照	－
水分特性曲線	－	－		－	式(2-1) θ_S =0.538 θ_r=0.000 $\alpha=3.80\times10^{-3}$ n=1.29	式(2-1) θ_S =0.460 θ_r=0.000 $\alpha=3.80\times10^{-3}$ n=1.29	式(2-1) θ_S=0.329 θ_r=0.000 $\alpha=5.00\times10^{-3}$ n=1.38	－
比透水係数	－	－		－	式(2-3)			－
温度勾配水分拡散係数	$m^2/s\ K$	－	－	－	－	－	式(3-5) 式(3-6)	－
実効拡散係数	m^2/s	9.0×10^{-12}			3.00×10^{-10}			－
縦分散長	m	0.1						－
横分散長	m	0.01						－

※表中の式は、鈴木ほか（2023）を参照のこと

表 2.3-12　MACBECE、THAEMSに用いられた解析用物性値（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022）

（緩衝材の解析物用性値）

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

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

※表中の文献は、日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター（2022）を参考のこと

表 2.3-12　（続き）

（埋戻し材の解析用物性値）

入力パラメータ		単位	入力値		備考
			上部埋め戻し材	下部埋め戻し材	
γ_t	単位体積重量	kN/m³	17.823	16.551	
ρ_{d0}	初期乾燥密度	Mg/m³	1.4	1.2	※1
G_s	土粒子比重	-	2.593	2.593	※2
E	弾性係数	MPa	17.967	3.933	※3
ν	ポアソン比	-	0.400	0.400	※4

※1：中山ほか（2016）
※2：日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター（2021）
※3：一軸圧縮試験結果（杉田ほか, 2020）での E50 の平均値
※4：核燃料サイクル開発機構（1999b）

※表中の文献は、日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター（2022）を参考のこと

（充填砂の解析用物性値）

入力パラメータ		単位	入力値	備考
γ_t	単位体積重量	kN/m³	18.054	※1
G_s	土粒子比重	-	2.51	※2
ρ_{d0}	初期乾燥密度	Mg/m³	1.4	※2
E	ヤング率	MPa	2.0×10^{5}	※1
ν	ポアソン比	-	0.3	※1
α_{TH}	線膨張係数	K^{-1}	1.33×10^{-5}	※2

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

$E = 2800N\ (kN/m^2)$

ただし、N=20 と仮定した。

※2：日本原子力研究開発機構（2018b）

※表中の文献は、日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター（2022）を参考のこと

⑦　熱物性値測定

熱物性は他の物性値（物理、力学、透水特性等）に比べデータが少ない。特に、温度依存性やLOSTUF のパラメータに必要な熱膨張係数に関するデータは特に少ない。このため本研究では、熱伝導率、比熱、熱膨張測定（線膨張）の温度依存性について把握する（表 2.3-13）。

表 2.3-13　試験項目、使用機器、手法

試験項目	使用機器	測定手法（規格等）
熱伝導率測定(gh)	アドバンス理工 GH-1	平板熱流計法（定常法, ASTM E1530 準拠）
比熱測定(sh)	アドバンス理工 SH-3000L	断熱法(長崎・高木, 1948)
熱膨張測定(dl)	アドバンス理工 DLY-9600	押し棒式（JIS Z2285 準拠）

(a)　測定試料

試料は、岩石、緩衝材、埋戻し材（乾燥密度が異なる２種類）である。整形・成形方法等を含め、表 2.3-14 にまとめた。3 つの熱物性測定に対し、4 種類の試料の乾燥状態・湿潤状態（純水、飽和度 80%目安）の各 5 供試体を作成し、試験を実施した。

表 2.3-14　試料の種類、状態、試験数量

試料		乾燥密度	状態	数量
岩石 (WK)	珪質泥岩（深度 350m の稚内層)※	平均 1.35 Mg/m^3	・(乾燥)：試料切断後、所定の形状に整形し、48 時間、120℃の乾燥炉に静置後、測定。 ・(湿潤)：試料切断後、所定の形状に整形し、24 時間、純水に浸漬後、測定。	各測定に対し、 乾燥（D）5 湿潤（W）5
緩衝材 (KV)	Na 型ベントナイト（クニゲル V1）+珪砂 6 号の混合土（7：3）	目標 1.60 Mg/m^3	・(乾燥)：粉体試料を最適含水比に調整後、治具にて圧縮成形し、48 時間、120℃の乾燥炉に静置後、測定。 ・(湿潤)：含水比を約 21.2%に調整（飽和度 80%目安）した粉体試料を治具にて圧縮成形後、速やかに測定。	各測定に対し、 乾燥（D）5 湿潤（W）5
埋戻し材① (BF1.2)	Na 型ベントナイト（クニゲル V1）+珪砂 6 号の混合土（3：7）	目標 1.20 Mg/m^3	・(乾燥)：粉体試料を最適含水比に調整後、治具にて圧縮成形し、48 時間、120℃の乾燥炉に静置後、測定。 ・(湿潤)：含水比を約 36.0%に調整（飽和度 80%目安）した粉体試料を治具にて圧縮成形後、速やかに測定。	各測定に対し、 乾燥（D）5 湿潤（W）5
埋戻し材② (BF1.4)		目標 1.40 Mg/m^3	・(乾燥)：粉体試料を最適含水比に調整後、治具にて圧縮成形し、48 時間、120℃の乾燥炉に静置後、測定。 ・(湿潤)：含水比を約 26.7%に調整（飽和度 80%目安）した粉体試料を治具にて圧縮成形後、速やかに測定。	各測定に対し、 乾燥（D）5 湿潤（W）5

※幌延 URL の深度 350m 調査坑道の試験坑道 4-7 連絡坑道より採取

(b) 熱伝導率

熱伝導率測定は、供試体の温度依存性の把握のため、30℃、50℃、70℃、100℃で測定を行った。測定方法は定常法であり、所定の温度まで 5 分で昇温させ、その後の 10 分間で、温度および熱流束の収束判定を行う。収束の場合は次の所定の温度へ、未収束判定の場合は温度を 4℃低下させ再計測を行い、収束判定後に次の所定の温度へ昇温する。供試体寸法は、直径 50mm×厚さ 5mm である。

熱伝導率測定の結果について、図 2.3-17 に示す。また使用した供試体一覧および試験前後（乾燥状態で測定する供試体は、乾燥させる前後）の質量と密度を表 2.3-15 に示す。

乾燥状態の熱伝導率はばらつきも少なく、計測範囲でわずかに正の線形の温度依存性を有する。逆に、湿潤状態では強い負の線形温度依存性を示すが、これは測定時の温度上昇にともなう水分蒸発の影響と考えられる。

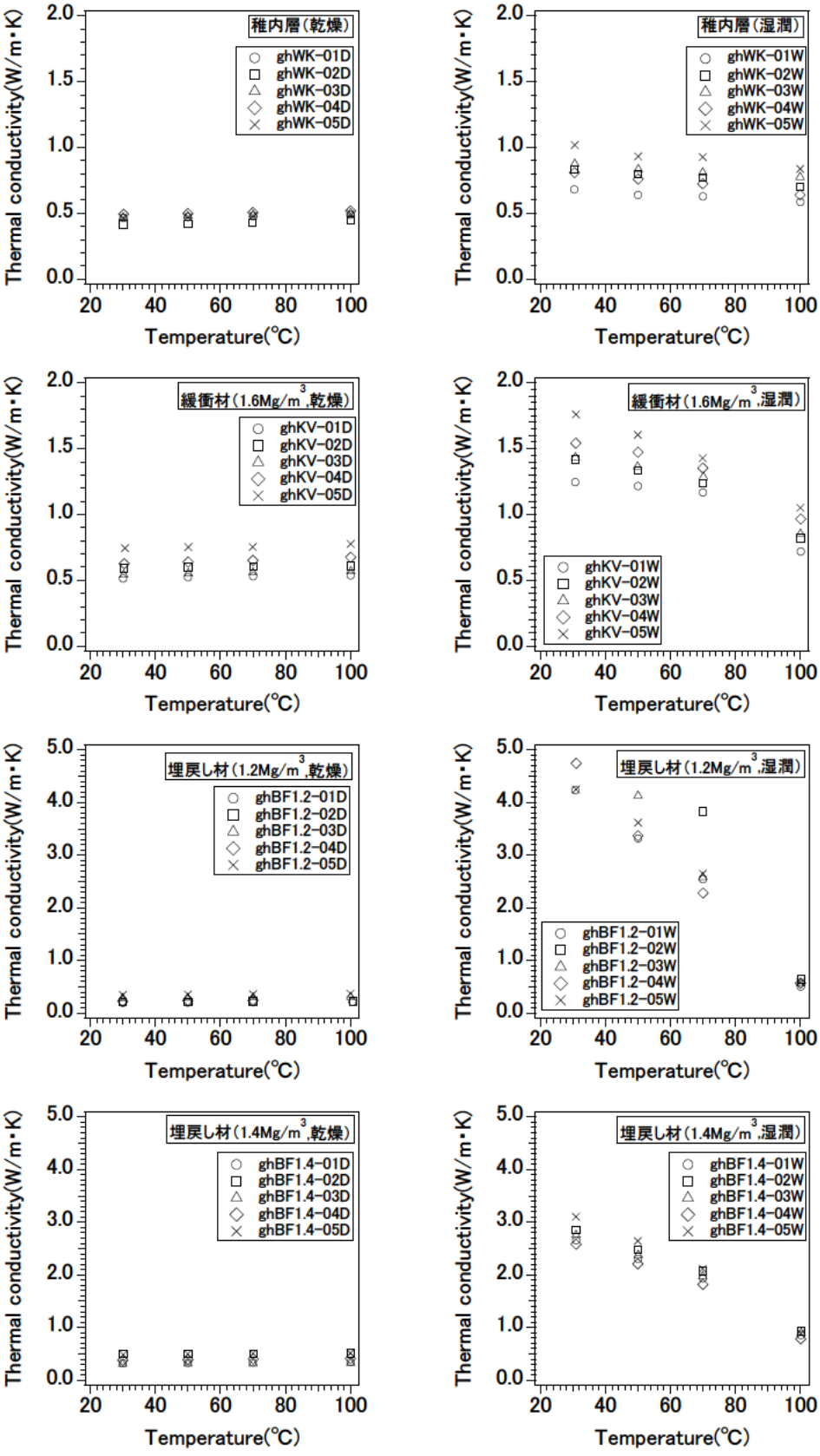


図 2.3-17　熱伝導率測定結果

表 2.3-15　熱伝導率測定の供試体一覧

試料名	乾/湿	試験(乾燥)前 質量(g)	試験(乾燥)前 密度(Mg/m^3)	試験(乾燥)後 質量(g)	試験(乾燥)後 密度(Mg/m^3)
ghWK-01D	乾	17.93	1.75	13.60	1.34
ghWK-02D	乾	18.21	1.77	13.95	1.37
ghWK-03D	乾	18.73	1.76	14.44	1.37
ghWK-04D	乾	16.65	1.78	12.69	1.34
ghWK-05D	乾	18.66	1.81	14.22	1.35
ghWK-01W	湿	17.76	1.75	13.60	1.34
ghWK-02W	湿	17.54	1.77	13.20	1.34
ghWK-03W	湿	17.11	1.76	12.78	1.33
ghWK-04W	湿	17.00	1.77	12.84	1.34
ghWK-05W	湿	17.03	1.77	12.68	1.32
ghKV-01D	乾	18.15	1.72	15.92	1.55
ghKV-02D	乾	18.19	1.78	15.98	1.61
ghKV-03D	乾	18.06	1.77	15.87	1.62
ghKV-04D	乾	18.26	1.83	16.12	1.66
ghKV-05D	乾	18.27	1.88	15.90	1.71
ghKV-01W	湿	19.11	1.83	16.05	—
ghKV-02W	湿	19.23	1.91	16.31	—
ghKV-03W	湿	18.83	1.87	16.02	1.64
ghKV-04W	湿	19.07	1.91	16.12	1.68
ghKV-05W	湿	19.02	1.95	16.09	1.72
ghBF1.2-01D	乾	14.20	1.45	11.92	1.19
ghBF1.2-02D	乾	14.15	1.43	11.95	1.18
ghBF1.2-03D	乾	14.09	1.50	11.90	1.23
ghBF1.2-04D	乾	14.19	1.45	12.04	1.26
ghBF1.2-05D	乾	14.12	1.47	11.97	1.23
ghBF1.2-01W	湿	15.71	1.61	11.91	—
ghBF1.2-02W	湿	15.97	1.64	12.11	—
ghBF1.2-03W	湿	15.84	1.58	12.16	—
ghBF1.2-04W	湿	15.96	1.54	12.06	—
ghBF1.2-05W	湿	16.03	1.63	12.06	—
ghBF1.4-01D	乾	15.91	1.54	13.92	1.34
ghBF1.4-02D	乾	15.96	1.67	13.98	1.48
ghBF1.4-03D	乾	15.78	1.52	13.93	1.38
ghBF1.4-04D	乾	15.73	1.59	13.88	1.37
ghBF1.4-05D	乾	15.79	1.62	13.91	1.43
ghBF1.4-01W	湿	17.38	1.78	14.00	—
ghBF1.4-02W	湿	17.35	1.79	14.06	1.54
ghBF1.4-03W	湿	17.44	1.73	14.13	—
ghBF1.4-04W	湿	17.43	1.80	14.00	1.50
ghBF1.4-05W	湿	17.37	1.76	14.11	—

gh, 熱伝導率測定; WK, 稚内層；KV, 緩衝材; BF1.2, 埋戻し材①; BF1.4, 埋戻し材②; D, 乾燥; W, 湿潤

*測定後に供試体破損のため密度不算出

(c) 比熱

比熱測定は、供試体の温度依存性の把握のため、室温～100℃で連続的に測定を行った。測定方法は、断熱法であり、断熱状態（供試体と断熱容器が等温になっている状態）におかれた供試体を一定電力（本研究では 0.2W）で加熱した時の、供試体の温度上昇量とそれに要した時間を測定することで比熱を求める。供試体寸法は、直径 16mm×高さ 31mm である。

比熱測定の結果について、図 2.3-18 に示す。また使用した供試体一覧および試験前後（乾燥状態で測定する供試体は、乾燥させる前後）の質量と密度を表 2.3-16 に示す。

測定初期（25～35℃程度）の急激な値の上昇は、昇温開始から試料を含む系内に一定の温度勾配が形成されるまでは、昇温速度の微分値を使用する本機器では安定した値が得られない特性によるものである。全ての測定値でばらつきは小さく、正の温度依存性を示した。乾燥状態では100℃までほぼ線形に上昇する。一方湿潤状態では、70℃程度以上から急激に比熱値が上昇する。これは熱伝導率測定と同様に、供試体内の水分の蒸発の影響によるものと考えられる。

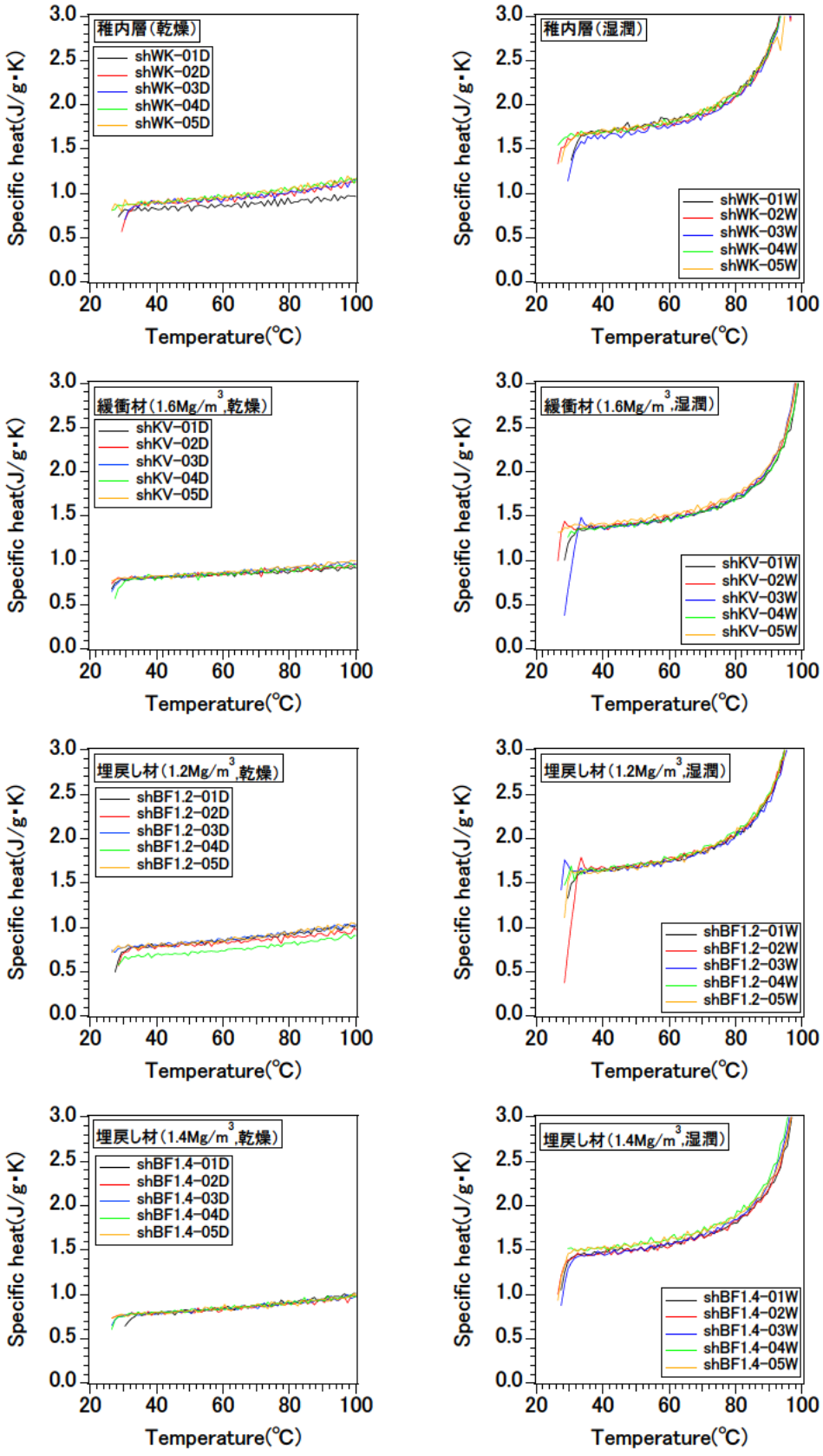


図 2.3-18　比熱測定結果

表 2.3-16　比熱容量測定の供試体一覧

試料名	乾/湿	試験(乾燥)前 質量(g)	試験(乾燥)前 密度(Mg/m^3)	試験(乾燥)後 質量(g)	試験(乾燥)後 密度(Mg/m^3)
shWK-01D	乾	9.75	1.76	7.40	1.40
shWK-02D	乾	9.02	1.77	6.83	1.36
shWK-03D	乾	9.30	1.78	7.22	1.38
shWK-04D	乾	9.99	1.79	7.60	1.37
shWK-05D	乾	9.00	1.80	6.86	1.37
shWK-01W	湿	9.76	1.74	7.45	1.39
shWK-02W	湿	9.65	1.78	6.93	1.29
shWK-03W	湿	9.45	1.79	7.30	1.38
shWK-04W	湿	9.03	1.80	7.67	1.53
shWK-05W	湿	9.79	1.79	6.90	1.26
shKV-01D	乾	11.61	1.82	10.05	1.62
shKV-02D	乾	11.55	1.87	10.01	1.67
shKV-03D	乾	11.54	1.85	10.15	1.67
shKV-04D	乾	11.62	1.98	10.19	1.72
shKV-05D	乾	11.70	1.83	10.25	1.64
shKV-01W	湿	12.22	1.96	10.25	1.79
shKV-02W	湿	12.19	1.97	10.26	1.83
shKV-03W	湿	12.01	1.95	10.16	1.77
shKV-04W	湿	12.07	1.92	10.22	1.74
shKV-05W	湿	12.01	1.94	10.24	1.78
shBF1.2-01D	乾	9.02	1.49	7.61	1.23
shBF1.2-02D	乾	9.00	1.47	7.57	1.25
shBF1.2-03D	乾	8.95	1.44	7.54	1.21
shBF1.2-04D	乾	8.97	1.56	7.58	1.29
shBF1.2-05D	乾	9.03	1.45	7.64	1.23
shBF1.2-01W	湿	10.15	1.73	7.60	1.44
shBF1.2-02W	湿	10.13	1.66	7.63	1.40
shBF1.2-03W	湿	10.08	1.66	7.59	1.42
shBF1.2-04W	湿	10.13	1.73	7.55	1.47
shBF1.2-05W	湿	10.18	1.65	7.69	1.39
shBF1.4-01D	乾	10.12	1.60	8.89	1.40
shBF1.4-02D	乾	10.10	1.62	8.87	1.43
shBF1.4-03D	乾	9.99	1.65	8.82	1.44
shBF1.4-04D	乾	10.05	1.65	8.87	1.46
shBF1.4-05D	乾	10.02	1.61	8.81	1.41
shBF1.4-01W	湿	10.96	1.76	8.85	1.53
shBF1.4-02W	湿	10.95	1.79	8.85	1.54
shBF1.4-03W	湿	10.93	1.89	8.81	1.64
shBF1.4-04W	湿	11.12	1.80	8.78	1.48
shBF1.4-05W	湿	11.08	1.82	8.70	1.44

sh, 比熱測定; WK, 稚内層 ; KV, 緩衝材; BF1.2, 埋戻し材①; BF1.4, 埋戻し材②; D, 乾燥; W, 湿潤

(d) 熱膨張係数

熱膨張測定は、供試体の温度依存性の把握のため、押し棒式熱膨張計を使用し室温～100℃で連続的に測定を行った。測定方法は、石英ガラスで作られた試料台（管）の端部と検出棒（押し棒）の間に供試体を設置し、温度変化にともなう供試体長さの変化を検出棒の変位として差動トランス型変位計で線膨張を測定するものである。熱膨張係数は、温度上昇による供試体長さの初期からの変化量を供試体長で除したものである。本研究では昇温速度を 1℃/min とした。供試体寸法は、直径 10mm×高さ 50mm である。

熱膨張および平均熱膨張係数の結果について、図 2.3-19 に示す。また使用した供試体一覧および試験前後（乾燥状態で測定する供試体は、乾燥させる前後）の質量と密度を表 2.3-17 に示す。

熱膨張および熱膨張係数は、熱伝導率、比熱に比べ、特に埋め戻し材にややばらつきが見られる。これは供試体の寸法（直径）が他の測定に比べて小さく、ケイ砂の偏りが影響した可能性がある。乾燥状態では温度依存性は小さく、湿潤状態では昇温による水分蒸発の影響が見られる傾向は、熱伝導率、比熱測定結果と同様である。

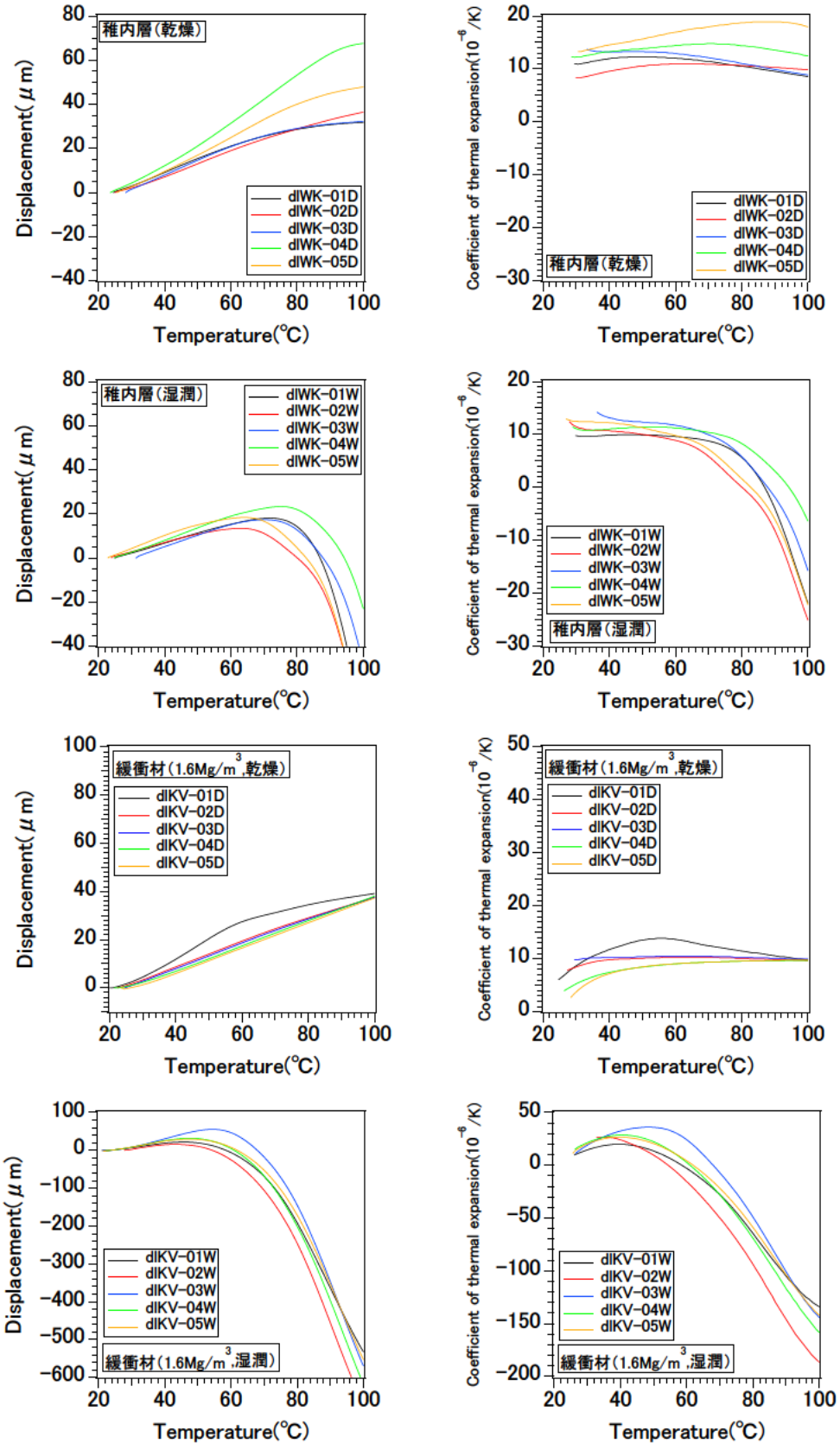


図 2.3-19　稚内層、緩衝材の熱膨張測定結果（左）および熱膨張係数（右）

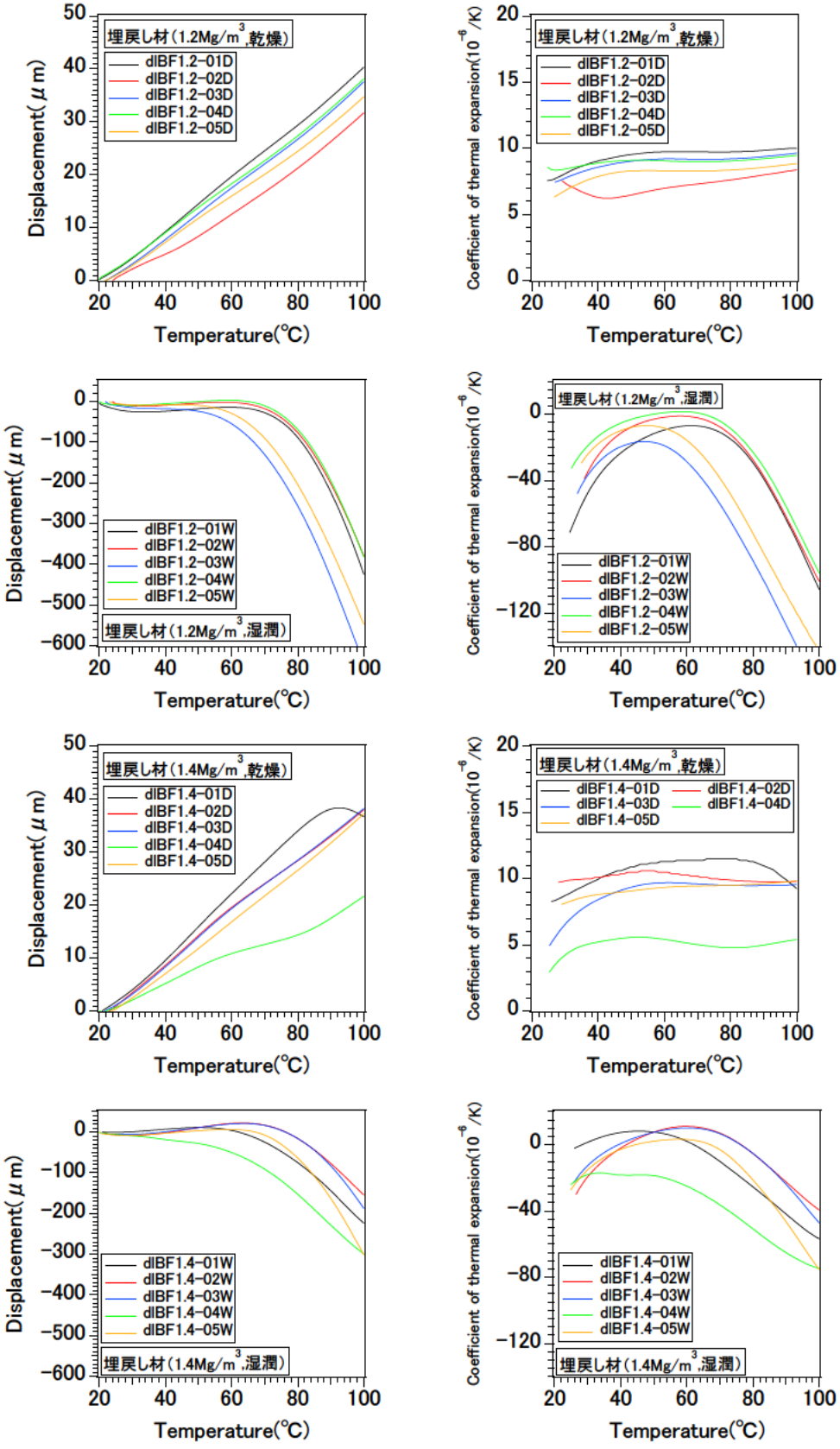


図 2.3-20　埋戻し材①、②の熱膨張測定結果および熱膨張係数

表 2.3-17　熱膨張測定の供試体一覧

試料名	乾/湿	試験(乾燥)前 質量(g)	試験(乾燥)前 密度(Mg/m^3)	試験(乾燥)後 質量(g)	試験(乾燥)後 密度(Mg/m^3)
dlWK-01D	乾	5.63	1.76	4.30	1.36
dlWK-02D	乾	4.98	1.79	3.83	1.40
dlWK-03D	乾	5.85	1.78	4.48	1.38
dlWK-04D	乾	5.98	1.74	4.56	1.35
dlWK-05D	乾	5.88	1.79	4.48	1.37
dlWK-01W	湿	5.36	1.77	4.00	1.33
dlWK-02W	湿	4.80	1.77	3.59	1.33
dlWK-03W	湿	5.25	1.77	3.94	1.35
dlWK-04W	湿	5.65	1.78	4.33	1.34
dlWK-05W	湿	5.78	1.75	4.21	1.30
dlKV-01D	乾	7.35	1.87	6.29	1.64
dlKV-02D	乾	7.33	1.85	6.30	1.62
dlKV-03D	乾	7.34	1.87	6.21	1.62
dlKV-04D	乾	7.80	1.99	6.52	1.73
dlKV-05D	乾	7.73	1.96	6.49	1.72
dlKV-01W	湿	7.47	1.91	6.42	1.73
dlKV-02W	湿	7.62	1.94	6.47	1.77
dlKV-03W	湿	7.55	1.92	6.46	1.73
dlKV-04W	湿	7.57	1.92	6.54	1.77
dlKV-05W	湿	7.60	1.95	6.58	1.76
dlBF1.2-01D	乾	5.65	1.47	4.81	1.27
dlBF1.2-02D	乾	5.66	1.47	4.84	1.29
dlBF1.2-03D	乾	5.64	1.49	4.83	1.27
dlBF1.2-04D	乾	5.64	1.51	4.79	1.27
dlBF1.2-05D	乾	5.61	1.47	4.78	1.25
dlBF1.2-01W	湿	6.47	1.66	4.88	1.38
dlBF1.2-02W	湿	6.39	1.65	4.91	1.39
dlBF1.2-03W	湿	6.33	1.65	4.79	1.35
dlBF1.2-04W	湿	6.32	1.63	4.80	1.32
dlBF1.2-05W	湿	6.39	1.66	4.92	1.39
dlBF1.4-01D	乾	6.43	1.72	5.69	1.47
dlBF1.4-02D	乾	6.34	1.63	5.61	1.44
dlBF1.4-03D	乾	6.36	1.66	5.62	1.46
dlBF1.4-04D	乾	6.30	1.65	5.68	1.45
dlBF1.4-05D	乾	6.33	1.70	5.65	1.47
dlBF1.4-01W	湿	6.85	1.76	5.58	1.47
dlBF1.4-02W	湿	6.99	1.79	5.68	—*
dlBF1.4-03W	湿	7.05	1.80	5.83	1.53
dlBF1.4-04W	湿	6.90	1.80	5.67	1.51
dlBF1.4-05W	湿	6.90	1.80	5.64	—*

dl, 熱膨張測定; WK, 稚内層 ; KV, 緩衝材; BF1.2, 埋戻し材①; BF1.4, 埋戻し材②; D, 乾燥; W, 湿潤

*測定後に供試体破損のため密度未測定

(e) 既往研究との比較

各測定結果の 5 供試体の平均値について、表 2.3-18（熱伝導率）、表 2.3-19（比熱、30℃から 10℃ごとの値）、表 2.3-20（熱膨張係数、5 供試体の平均値、30℃から 10℃ごとの値）に示す。なお、埋戻し材②の dlBF1.4-04D、04W について、供試体作製時に含水比が他の供試体より 2%程度低かったことが確認されており、平均値の計算から除外した。

大まかな傾向について、いずれの測定、熱特性結果についても、温度依存性、水分量（含水比）依存性が確認された。

稚内層の熱物性測定は、本研究では深度 350m 調査坑道から採取した岩石を測定したが、山本ほか（2004）において HDB-6 孔の深度 250m（声問層）と 500m（稚内層）のコア試料から熱伝導率、比熱、熱膨張係数が、温度依存性も含めて示されている。稚内層の熱伝導率および比熱の温度依存性については、乾燥および湿潤状態ともに、山本ほか（2004）と本研究はほぼ同様の傾向を示す。また、熱膨張係数については、山本ほか（2004）では乾燥状態のみの測定だが、温度上昇とともに熱膨張係数が小さくなる傾向があり、本研究の測定結果と調和的である。

ベントナイト・砂（あるいは掘削ずり）混合土である緩衝材および埋戻し材の熱伝導率と比熱（熱拡散率からの計算値も含む）について、既往研究で幅広い密度、含水比において計測されている（藤田ほか, 1992; 谷口ほか, 1999; 鈴木・谷口, 1999; 菊池・棚井, 2003; 2025; 中島ほか, 2017; 原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018; 杉田ほか, 2021; 山本ほか, 2022）。これらの研究では、概略として、高い密度および高い含水比ほど熱伝導率と比熱は高い傾向を示す。また、混合土の割合が高いほど低い熱伝導率を示す一方で、比熱は大きくは変わらない。

熱伝導率について、本研究の緩衝材（ケイ砂 30%混合）は、乾燥密度 1.6Mg/m^3、乾燥および湿潤状態で 30～100℃の範囲で測定している。本研究の 30℃・乾燥および湿潤状態での緩衝材の熱伝導率は 0.60W/m･K および 1.48 W/m･K であり、既往研究と同等の緩衝材は 0.4～0.6 W/m･K および 1.4～1.8 W/m･K と同等であった。埋戻し材については、谷口ほか（1999）では密度 1.4～1.8 Mg/m^3、ケイ砂混合率 50%、原子力環境整備促進・資金管理センター（2018）では密度 1.8 Mg/m^3、ケイ砂混合率 85%、杉田ほか（2021）では密度 1.2～1.4 Mg/m^3、幌延掘削ずり混合率 60%（かつ試験溶液が NaCl）と、本研究の密度 1.2～1.4 Mg/m^3、砂混合率 70%と直接比較出来る値は無いが、密度 1.4Mg/m^3、ケイ砂混合率 50%の乾燥状態（谷口ほか, 1999）では 0.2～0.4 W/m･K であり、本研究の値とほぼ同等であった。一方で、本研究の埋戻し材の湿潤状態、30℃時の熱伝導率は既往研究に比べ 2～3 倍の値を示したが、原因は現在検討中である。温度依存性について、乾燥状態の緩衝材、埋戻し材では鈴木・谷口（1999）において小さい結果を示しており、本研究の傾向と同様であった。また、湿潤状態における熱伝導率の低下は鈴木・谷口（1999）でも確認されており、測定における水分の蒸発の影響が考えられる。

比熱について、密度 1.6 Mg/m^3、乾燥および湿潤状態で、谷口ほか（1999）や 鈴木・谷口（1999）では 0.3～0.5 J/g･K および 0.3～0.8 J/g･K 程度、菊池・棚井（2003）や原子力環境整備促進・資金管理センター（2018）では 0.7～0.9 J/g･K および 1.1～1.4 J/g･K お程度を示している。本研究の緩衝材、埋戻し材の熱伝導率は、ともに、菊池・棚井（2003）や原子力環境整備促進・資金管理センター（2018）の値に近い。

一方で緩衝材、埋戻し材の熱膨張係数についてはデータが少なく、原子力環境整備促進・資金管理センター（2018）での膨張ひずみの計測や、例えば Birkholzer et al. (2008)や佐藤ほか（2020）などの解析入力用物性値として、10^{-6}～10^{-5}/K が示されるにとどまる。本研究で得られた緩衝材および埋戻し材の熱膨張係数は、30℃・乾燥状態では 7.2～8.3×10^{-6}/K であり、温度上昇とともに増加し、100℃では 9.2～9.8×10^{-6}/K 程度であった。湿潤状態では、60℃程度から急激に熱膨張係数が小さくなり、それ以降は水分蒸発にともなうと思われる熱収縮の傾向を示した。

表 2.3-18　熱伝導率測定結果（平均値）

温度 (℃)	熱伝導率（W/m･K）							
	稚内層		緩衝材		埋戻し材①		埋戻し材②	
	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤
30	0.461	0.843	0.604	1.4803	0.253	4.777	0.399	2.792
50	0.469	0.793	0.614	1.3989	0.261	3.609	0.408	2.402
70	0.477	0.773	0.621	1.2948	0.266	2.777	0.414	1.984
100	0.490	0.707	0.634	0.8818	0.274	0.574	0.421	0.873

表 2.3-19　比熱測定結果（平均値）

温度 (℃)	比熱（J/g･K）							
	稚内層		緩衝材		埋戻し材①		埋戻し材②	
	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤
30	0.804	1.513	0.784	1.249	0.735	1.498	0.737	1.433
40	0.886	1.685	0.815	1.375	0.776	1.654	0.789	1.491
50	0.898	1.750	0.833	1.415	0.804	1.679	0.805	1.522
60	0.931	1.796	0.860	1.456	0.819	1.762	0.851	1.590
70	0.959	1.916	0.875	1.561	0.871	1.876	0.873	1.689
80	1.010	2.113	0.894	1.733	0.910	2.078	0.897	1.862
90	1.062	2.678	0.926	2.056	0.938	2.495	0.931	2.284
100	1.126	7.533	0.949	3.982	0.991	5.871	0.984	5.300

表 2.3-20　熱膨張係数（平均値）

温度 (℃)	熱膨張係数（10^{-6}/K）							
	稚内層		緩衝材		埋戻し材①		埋戻し材②	
	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤	乾燥	湿潤
30	12.129	11.202	7.265	19.178	7.657	-32.868	8.339	-11.804
40	12.579	11.420	9.306	26.452	8.119	-14.024	9.329	0.680
50	13.181	10.990	10.204	20.497	8.478	-7.754	9.958	6.182
60	13.501	10.274	10.534	2.512	8.652	-10.203	10.211	6.691
70	13.455	8.476	10.401	-26.996	8.693	-23.047	10.165	0.334
80	13.085	4.409	10.203	-67.194	8.784	-47.937	10.094	-14.074
90	12.440	-3.204	9.986	-114.528	8.989	-83.289	9.983	-33.381
100	11.464	-17.872	9.792	-153.186	9.266	-122.165	9.626	-54.436

(3) 成果と今後の課題

人工バリア性能確認試験の遠心力加速模型実験による長期現象理解と数値解析の高度化のため、令和 5 年度は、参画する幌延国際共同研究プロジェクト（HIP）のスケジュールに則り、研究計画を策定した。遠心力模型実験は、2024 年度に計測確認試験、2025 年度以降に人工バリア性能確認試験の縮尺模型を用いた加速実験を実施する。数値解析（LOSTUF）は、2024 年度に試解析、2025 年度以降に模型実験および人工バリア性能確認試験の解析を実施する予定である。

また、LOSTUF に入力するパラメータを整理し、追加取得が必要な、熱伝導率、比熱、熱膨張係数について、その温度依存性のデータを取得した。計測試料は、岩石（稚内珪質泥岩）、緩衝材、埋戻し材であり、乾燥および湿潤（飽和度 80%目安）状態で測定した。結果は、温度依存性を有し、試料作成時のばらつきや、乾燥／湿潤状態による影響が認められた。これらの得られたデータをパラメータ化し、次年度以降の数値解析に入力する予定である。

2.4. ニアフィールド状態変遷評価技術の統合とニアフィード核種移行評価への反映

本課題では、ニアフィールドを構成する材料の相互作用等の複合的な評価技術の信頼性向上を図り、地層処分場の閉鎖後長期の安全性の現実的な評価手法の構築に資することを目的とし，長期室内試験、ナチュラルアナログ研究、幌延地下施設で取得された試料等を対象に炭素鋼ーベントナイトーセメントの相互作用に関わる現象の解明を進めることとしている。また、熱ー水ー力学ー化学の連成現象については、幌延の人工バリア性能確認試験で得られたデータを活用し、力学の影響を含めて評価可能な解析モデルにより再現解析を実施し、モデルの検証を行うこととしている。令和５年度の実施内容については、2.2 項から 2.3 項で述べた。これらの個別の成果ならびに後述する熱影響評価技術の高度化（第３章），ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化（第４章），人工バリアの閉じ込め機能の高度化（第５章）を通じて得られた成果について、ニアフィールド状態変遷評価技術への統合を目指した検討を進める計画である。

また，この取り組みを通じて統合化された成果のうち，核種移行で着目すべきニアフィールドの状態変遷や取り扱いなどの知見は，別事業として進められている「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「ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発」（以下，NF 核種移行評価）での活用を見据え、適切に整理・提供される必要がある。NF 核種移行評価では、先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2019；2020；2021；2022；2023）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に、「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が進められる計画である。

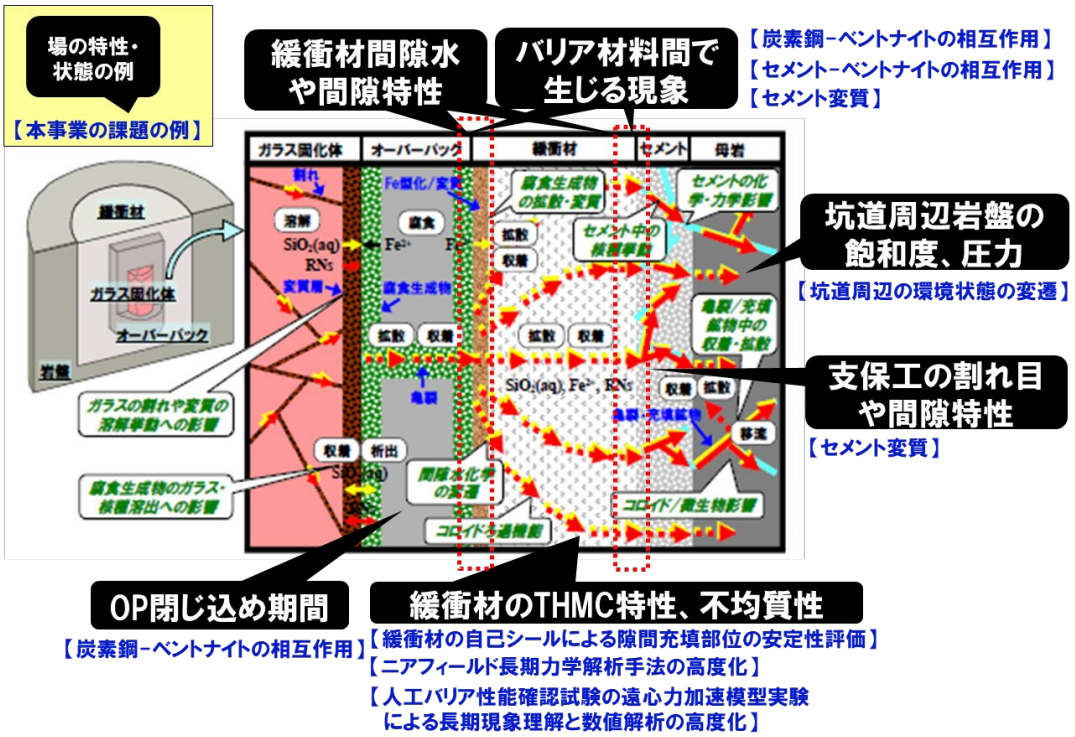


図 2.4-1　NF核種移行評価において考慮が必要な場の特性・状態と本事業の課題の関係

NF 核種移行評価において考慮が必要な場の特性・状態と本事業の課題（本章の課題を例示）

には図 2.4-1 に示すような関係がある。このうち，オーバーパックと緩衝材境界については，先行事業で炭素鋼-ベントナイトの相互作用に関わる複合現象評価において表 2.4-1 に示す課題の抽出と想定される複数のシナリオの整理がされている。これらのシナリオの正否の検証には，本事業で得られる成果の反映を通じた，不確実性の低減が不可欠である。令和 5 年度は，2.2 項から 2.3 項および後述する 3 章で得られる成果について、核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容、核種移行シナリオでの取り扱いの見通し、核種移行評価への反映と時期の 3 つの観点で整理した結果を表 2.4-2～表 2.4-5 に示す。一方、これらの表は本事業での実施項目に対して整理したものであり、課題の列は多様な視点で設定された項目が記載されている。例えばニアフィールド構成要素や場の視点で課題設定されている課題（例えば「炭素鋼-ベントナイトの相互作用」、「セメント-ベントナイトの相互作用」）、現象や特性の視点で設定されている課題（「緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価」）、課題に対するアプローチの観点で設定されている課題（「幌延地下施設での 100℃超条件における原位置試験」）などである。また、表 2.4-2 の「緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価」（第 2 章の課題）と表 2.4-5 中の「幌延地下施設での 100℃超条件における原位置試験」、「100℃超を含む温度条件における緩衝材特性の評価」（第 3 章の課題）は、いずれも緩衝材の自己シール性に関する取り組みが含まれているが、本事業での実施項目としては異なる章立てとなっており、核種移行評価への反映についても別々の表に記載されている。前者は主に岩盤との界面近傍、後者は主にオーバーパックとの界面近傍の領域が対象であるものの共通的な特性を対象としている。したがって、核種移行評価への反映にあたり、例えばニアフィールド構成要素（界面を含む）に対して再整理するなど統一的な観点で再整理する必要があり、今後その具体化を検討する予定である。

表 2.4-1　炭素鋼－ベントナイト相互作用に関わる複合現象評価において抽出された課題の例
（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2023）

対象となる主なプロセス	複合現象をモデル化する上で留意すべき課題の例
･還元環境での炭素鋼腐食 ･鉄腐食生成物層の形成（マグネタイトやシデライト等） ･溶存Fe(II)イオン拡散 ･モンモリロナイト等の初期鉱物の溶解 ･固相化学組成の変化（モンモリロナイト等の初期鉱物の含有率低下及び二次鉱物沈殿） ･モンモリロナイト等の溶解成分の拡散、非膨潤性二次鉱物層（バーチェリン等）の形成 ･鉄腐食生成物による膨張、ひび割れ発生	･知見やモデルの不確実性が大きいため、一義的なシナリオだけで、複合現象を評価するのが困難。このため、発生可能性のある複数のシナリオを想定し、各シナリオの中で、適切なモデルを選択し、評価することが必要。例えば、溶存Fe(II)イオンの挙動としては、 － OP腐食に伴い生じた溶存Fe(II)イオンが腐食生成物として沈殿・消費されるシナリオ － OPと緩衝材境界近傍で非膨潤性二次鉱物等として沈殿・消費されるシナリオ － ある程度、緩衝材領域に拡散した後、非膨潤性二次鉱物等として沈殿・消費されるシナリオ等 が想定される。 ･上述したようなシナリオの分岐の条件を把握するためには、腐食生成物の皮膜形成に伴い変化する溶存Fe(II)イオンの供給速度、腐食生成物と非膨潤性二次鉱物等の沈殿速度、二次鉱物等の沈殿に伴う間隙率や拡散係数等の物質移行パラメータの変化を考慮したモデルによる探索的な解析評価が必要 ･非膨潤性二次鉱物の生成は、収縮に伴い、ひび割れの発生可能性もあり

表 2.4-2　2.2.1項および2.2.2項の成果の核種移行評価への反映

課題	核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容	核種移行シナリオでの取り扱いの見通し	核種移行評価への反映と時期
緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価	・環境条件や緩衝材の変質等により緩衝材の膨潤特性の変化が生じた場合，自己シール性が低下し，岩盤/緩衝材境界における卓越流路の形成や緩衝材内における核種移行経路の形成につながる可能性がある。 ・本課題では，自己シール試験を通じて岩盤/緩衝材境界領域における緩衝材の自己シール性の発揮や、その中長期的な維持に影響する諸条件を把握することで，核種移行評価における不確実性を低減する。	・膨潤によって隙間が充填され、その状態が維持される条件では、岩盤/緩衝材境界領域における隙間による卓越流路の形成は考慮しないものとする。	【令和９年度】 ・自己シール性の発揮や、その中長期的な維持に影響する諸条件に関する知見の提示
炭素鋼-ベントナイトの相互作用	・モンモリロナイトの溶解や二次鉱物生成等が生じた場合，核種移行の遅延に係る緩衝材の安全機能（「コロイド移行の抑制」,「放射性物質の移流による移行の抑制」,「放射性物質の収着」）に影響する可能性がある。 ・本課題では，超長期試験等で取得される知見に基づき腐食モデル（べき乗則）の妥当性を確認するとともに，腐食生成物種，緩衝材の変質状態の詳細を把握する。これらを踏まえ緩衝材の変質状態及び変質領域（厚さ）の経時変化を評価するモデルを構築する。	(1)変質領域が十分小さい場合（例 NUMOSC 付属書 6-8）： 影響は緩衝材/オーバーパック境界近傍に限定されると想定されることから，緩衝材の安全機能への影響は考慮する必要がないものとする。 (2)変質領域が有意に大きい場合： 変質状態及び変質領域の経時変化など，核種移行評価に反映するためのニアフィールド状態変遷に関する知見として受け渡す。	【令和７年度】 ・超長期試験試料の分析結果等に基づく，腐食量，腐食生成物種，緩衝材変質状態に関する知見の提示 【令和９年度】 ・モデルによる変質領域の経時変化の評価の提示

表 2.4-3　2.2.3項および2.2.4項の成果の核種移行評価への反映

課題	核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容	核種移行シナリオでの取り扱いの見通し	核種移行評価への反映と時期
セメント-ベントナイトの相互作用	・モンモリロナイトの溶解や二次鉱物生成等が生じた場合，核種移行の遅延に係る緩衝材の安全機能（「コロイド移行の抑制」,「放射性物質の移流による移行の抑制」,「放射性物質の収着」）に影響する可能性がある。 ・本課題では，セメント/ベントナイト接触試験を通じ、変質領域に生成する二次鉱物の種類、量、広がりを把握する。また、反応輸送解析から二次鉱物の生成条件の類型化を試みる。これらを踏まえ緩衝材の変質状態及び変質領域（厚さ）の経時変化を、変質領域に生じた二次鉱物の長期的な安定性も含め評価する。変質により物質移行に係るパラメータの変化が見込まれる場合には、必要に応じて、パラメータ設定を試みる。	(1)変質による物質移行特性への影響が長期にわたり十分小さいと確認できる場合： 核種移行シナリオの設定において，緩衝材の安全機能への影響は考慮する必要がないものとする。 (2)(1)に該当しない場合： 変質状態及び変質領域の経時変化など，核種移行評価に反映するためのニアフィールド状態変遷に関する知見として，核種総合事業に受け渡す。	【令和 7 年度】 ・セメント/ベントナイト接触試験試料の分析結果等に基づく，緩衝材変質状態に関する知見の提示 【令和 9 年度】 ・モデルによる変質領域の経時変化の評価の提示
セメント変質	・セメント系材料の変質に伴う化学的影響により、間隙水水質の変化，人工バリア（特に緩衝材）および天然バリア（周辺岩盤）の性能の変化が想定される。これらの変化の程度，範囲，長期変遷は，核種移行の場の状態を含む，過渡期から閉鎖後長期の状態の変遷に影響する可能性がある。 ・本課題では，地下水を試験溶液とした浸漬試験，高温条件での浸漬試験，幌延地下研究施設にて採取した施工後 10 年経過試料等の分析を通じ，温度や溶液条件の多様性に対応したモデルの改良・開発を進めるとともに，原位置環境下でのセメント系材料の変質・劣化挙動を把握する。	・セメント系材料の変質に伴う，緩衝材領域および周辺岩盤領域の間隙水水質の変化，変遷に関するモデル，知見，もしくはこれらを評価する際の前提となるモデル，知見を核種移行評価に受け渡す。 ・周辺岩盤の変質による物質移行特性への影響の可能性がある場合は，変質状態及び変質領域の経時変化など，核種移行評価に反映するためのニアフィールド状態変遷に関する知見として受け渡す。該当しない場合は，核種移行シナリオの設定において，緩衝材の安全機能への影響は考慮する必要がないものとする。	【令和 9 年度】 ・セメント系材料の変質に伴う，間隙水水質の変化，変遷に関するモデル，知見の提示 ・周辺岩盤の変質状態，変質領域の経時変化の評価に関連する知見の提示

表 2.4-4　2.2.5項および2.3項の成果の核種移行評価への反映

課題	核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容	核種移行シナリオでの取り扱いの見通し	核種移行評価への反映と時期
坑道周辺の環境状態の変遷	・坑道周辺では、坑道の掘削から埋め戻しに至る過程において、地下水の排水や再飽和により飽和度が変化する。岩石の飽和度が変化すると短期的・長期的な岩石強度に影響するため、岩盤内の飽和度が掘削損傷領域の発生領域やその後のクリープ変形等による長期力学的挙動に影響を及ぼし、坑道周辺の卓越流路の形成・経時変化に影響する可能性が危惧される。 ・本課題では、幌延の堆積岩を対象として飽和度および載荷速度を変化させた一軸圧縮試験を実施することで、力学的パラメータの飽和度依存性を評価する。	(1)予測される長期挙動変化が大きい場合： 取得されるパラメータから推定される長期変形挙動が顕著な場合、その時間スケールや空間スケール等の知見を、核種移行評価に反映するためのニアフィールド状態変遷に関する知見として、核種総合事業に受け渡す。 (2) (1)に該当しない場合： 核種移行シナリオの設定において、力学的影響による卓越流路の長期変化は考慮する必要がないものとする。	【令和 9 年度】 ・評価技術の提示
熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの確証	・人工バリアの定置後，人工バリアとその周辺岩盤を含むニアフィールド環境において，ガラス固化体からの放熱，周辺岩盤から緩衝材への地下水の浸入，緩衝材の飽和と膨潤応力の発生，緩衝材内における鉱物の溶解・析出，オーバーパックの腐食などの現象の進展が想定される。これらの現象は相互に影響し合う複合的な熱-水-応力-化学連成現象であり，核種移行の場の状態を含む，過渡期から閉鎖後長期の状態の変遷に影響する。 ・本課題では，幌延人工バリア性能確認試験や遠心力模型実験等を活用し，複合的な連成現象の評価に必要となる熱－水－応力－化学連成現象評価手法（解析ツール）の妥当性確認・高度化を行う。	・核種移行解析における初期状態から長期的な状態の変遷に係る環境条件の設定を評価する技術として受け渡す。	【令和 9 年度】 ・評価技術の提示

表 2.4-5　３章の成果の核種移行評価への反映

課題	核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容	核種移行シナリオでの取り扱いの見通し	核種移行評価への反映と時期
ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析	・緩衝材の温度は緩衝材の制限温度を考慮しない場合には空洞安定性を満足する坑道離間距離や定置間隔によって決定される。また、熱伝導解析における発熱量や物性値等のパラメータの設定、解析モデルにおけるギャップの扱い等によっても変わる。 ・まず NUMO-SC 処分概念をベースに制限温度を考慮しない場合における NF の温度分布を把握する。次に、ガラス固化体の発熱量、材料物性値などを変えた解析を実施し、100℃を超えるケースでの温度分布を把握する。	・緩衝材の制限温度を考慮しない場合の緩衝材の温度設定に関する知見として受け渡す。	【令和 6 年度】 ・NUMO-SC に準じた処分概念において緩衝材の制限温度を考慮しない場合の温度分布 【令和 9 年度】 ・多様なケースにおける温度分布
幌延地下施設での 100℃超条件における原位置試験	・高温条件によって、低透水性や自己シール性等の核種移行の遅延に係る性能に影響が生じる可能性がある。 ・幌延での人工バリア性能確認試験では加熱状態（90℃）では OP 近傍の緩衝材の含水比は低下し、地下水の浸潤が進みにくいことが確認されている。本課題では緩衝材の乾燥⇒高温履歴を経た緩衝材内への温度低下に伴う地下水浸潤の過程での現象に着目し、乾燥過程での亀裂の発生、温度低下後の再冠水、膨潤による亀裂の充填（自己シール性）等の挙動を工学規模の原位置試験で確認する。	・原位置試験と室内試験の結果を踏まえて 100℃超の高温下で乾燥・収縮・亀裂発生した後に温度が低下して地下水が浸潤しても低透水性や自己シール性等の安全機能に影響しないことを示す。 ・何らかの影響や機能低下の兆候が見られる場合はその領域と程度、メカニズムに関する知見などを受け渡す。	【令和 6 年度】 ・緩衝材の乾燥収縮や亀裂発生など高温の影響が及ぶ領域 【令和 9 年度】 ・熱履歴を経た緩衝材への地下水の浸潤挙動と、低透水性、自己シール性等の安全機能への影響
100℃超を含む温度条件における緩衝材特性の評価	・上記の原位置試験と並行して温度履歴を与えた緩衝材の膨潤圧や浸潤挙動等を種々の条件（温度、初期含水比、地下水水質等）で室内試験により把握する。		

参考文献

(2.2.1)

伊藤弘之，三原守弘，ベントナイト系材料の飽和透水係数の変遷評価式，核燃料サイクル開発機構研究報告，JNC-TN8400-2005-029, 2005.

伊藤雅和，岡本真由美，柴田雅博，佐々木康雄，壇原徹，鈴木啓三，渡辺隆，ベントナイトの鉱物組成分析，動力炉・核燃料開発事業団公開資料，PNC-TN8430 93-003, 1993.

児玉秀臣，土壌無機非晶質物質の分析－分別抽出法による同定と定量－，地質ニュース，496 号，pp.26-35, 1995.

Komine, H. and Ogata, N., Predicting swelling characteristics of bentonites, Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering, vol.130, pp.818-829, 2004.

Komine, H., Ogata, N., Takao, H., Nakashima, A., Osada, T. and Ueda, H., Self-sealing ability of buffer materials containing bentonite for HLW disposal, Clay Science for Engineering, Balkema, Rotterdam, ISBN 9058091759, pp.543-551, 2001.

Li, K.P., Chen, Y.G., Ye, W.M. and Wang, Q., Self-sealing behavior of bentonite-based materials in high-level radioactive waste disposal: A systematic review, Applied Clay Science, vol.235, pp.1-19, 2023. https://doi.org/10.1016/j.clay.2023.106873

宮脇律郎，佐野貴司，大橋文彦，鈴木正哉，小暮敏博，奥村大河，亀田純，梅染卓也，佐藤努，千野大輔，弘山郁織，山田裕久，田村堅志，森本和也，上原誠一郎，八田珠郎，日本粘土学会参考試料の分析・評価，粘土科学, vol.48, No.4, pp.158-198, 2010.

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, NUMO-TR-20-03, 2022.

鈴木啓三，榎戸洋之，伊藤弘志，山形県産モンモリロナイトの交換性陽イオン組成，粘土科学，vol.45, No.1, pp.14-18, 2005.

鈴木啓三，高木慎介，佐藤努，米田哲朗，高精製モンモリロナイトの調製とキャラクタリゼーション，粘土科学, vol.46, No.3, pp.147-155, 2007.

高山裕介，佐藤大介，菊池広人，膨潤圧試験中のベントナイトの膨潤圧変化に与える吸水圧縮挙動の影響，原子力バックエンド研究, vol.29, No.2, pp.101-111, 2022.

棚井憲治，菊池広人，中村邦彦，田中幸久，廣永道彦，ベントナイト系材料の標準的室内試験法構築に向けての試験法の現状調査と試験による検討, JAEA-Research2010-025, 2010.

Villar, M.V., Gutiérrez-Álvarez, C. and Campos, G., Bentonite swelling into a void under suction or water flow, Acta Geotechnica, vol.18, pp.1495-1513, 2023. https://doi.org/10.1007/s11440-022-01702-6

Watanabe, Y. and Yokoyama, S., Changes in swelling pressure and permeability of bentonite caused by ion exchange of montmorillonite. Proceedings of the 8th International Congress on Environmental Geotechnics. China, pp.523-528, 2018.

山本陽一，後藤考裕，北川義人，渡邊保貴，横山信吾，新橋美里，国内産ベントナイトおよびベントナイト混合土の基本特性データ, NUMO テクニカルレポート, NUMO-TR-21-02, 2022.

横山信吾，中村邦彦，田中幸久，廣永道彦，放射性廃棄物処分におけるベントナイト系材料のアルカリ溶液による変質挙動（その 2）－アルカリ溶液の種類がベントナイト混合土の透水性へ及ぼす影響－，電力中央研究所研究報告, N10037, 2011.

吉川絵麻，渡邊保貴，横山信吾，新橋美里，山本陽一，後藤考裕，高液固比条件において 200℃で加熱養生した Na 型ベントナイトの鉱物学的変化，令和 4 年度土木学会全国大会第 77 回年次学術講演会講演集, CS12-02, 2022.

Bellot-Gurlet, L., Neff, D., Reguer, S., Monnier, J., Saheb, M. and Dillmann P., Raman studies of corrosion layers formed on archaeological irons in various media. J. Nano Res., vol. 8, pp.147-156, 2009.

Carlson, L., Karnland, O., Oversby, V.M., Rance, A.P., Smart, N.R., Snellman, M., Vähänen, M., and Werme, L.O, Experimental studies of the interactions between anaerobically corroding iron and bentonite, Phys. Chem. Earth, Parts A/B/C, 32 (1–7), pp. 334-345, 2007.

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.

Guillaume, D., Neaman, A., Cathelineau, M., Mosser-Ruck, R., Peiffert, C., Abdelmoula, M., Dubessy, J., Villiéras, F. and Michau, N., Experimental study of the transformation of smectite at 80 and 300 ºC in the presence of Fe oxides, Clay Minerals, 39, pp.17-34, 2004.

Hadi, J., Wersin, P., Serneels, V. and Greneche, J-M., Eighteen years of steel–bentonite interaction in the FEBEX in situ test at the Grimsel Test Site in Switzerland. Clays and Clay Minerals, vol. 67, pp.111-131, 2019.

Kamei, G., Oda, C., Mitsui, S., Shibata, M. and Shinozaki, T., Fe (II)-Na ion exchange at interlayers of smectite: adsorption-desorption experiments and a natural analogue, Engineering Geology, 54, pp. 15-20, 1999.

Leupin, O.X., Smart, N.R., Zhang, Z., Stefanoni, M., Angst, U., Papafotiou, A., Diomidis, N.: Anaerobic corrosion of carbon steel in bentonite: an evolving interface. Corros. Sci. 187, 109523, 2021.

松井敏也, 出土鉄製品の保存と対応, 同成社, 2009.

Müller-Vonmoos, M., Kahr, G., Bucher, F., Madsen, F.T. and Mayor, P.-A.: Untersuchungen zum Verhalten von Bentonit in Kontakt mit Magnetit und Eisen unter Endlagerbedingungen. NAGRA Technical Report NTB 91-14, 1991.

Neff, D., Saheb, M., Monnier, J., Perrin, S., Descostes, M., L'Hostis, V., Crusset, D., Millard, A. and Dillmann, P., A review of the archaeological analogue approaches to predict the long-term corrosion behaviour of carbon steel overpack and reinforced concrete structures in the French disposal systems, Journal of Nuclear Materials, vol. 402, pp.196-205, 2010.

笹本広，石井智子，佐藤久夫，九石正美，鉄共存下でのベントナイトの変質に関わる実験的研究, JAEA-Research 2010-030, 2010.

Schneider, C. A., Rasband, W. S., and Eliceiri, K. W., NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis, Nature methods, 9(7), 671-675, 2012.

Seto, Y., Nishio-Hamane, D., Nagai, T. and Sata, N., Development of a Software Suite on X-ray Diffraction Experiments. Rev. High Press. Sci. Technol. 20, 269–276, 2010.

Seto, Y. and Ohtsuka, M., ReciPro: free and open-source multipurpose crystallographic software integrating a crystal model database and viewer, diffraction and microscopy simulators, and diffraction data analysis tools J. Appl. Cryst. 55, 55, 397-410, 2022.

Shirozu, H. and Bailey, S.W., Chlorite polytypism: III. Crystal structure of an orthohexagonal iron chlorite, American Mineralogist 50, 868-885, 1965.

Smart, N.R., Reddy, B., Rance, A. P., Nixon, D. J., Frutschi, M., Bernier-Latmani, R., Diomidis, N. The anaerobic corrosion of carbon steel in compacted bentonite exposed to natural

Opalinus Clay porewater containing native microbial populations, Corrosion Engineering, Science and Technology, 52:sup1, 101-112, 2017.

Smuts, J., Steyn, J.G.D. and Boeyens, J.C.A: The crystal structure of an iron silicate, iscorite, Acta Cryst., B25, pp. 1251–1255 (1969).

鈴木宏幸, 北山彩水, 三ツ井誠一郎, 谷口直樹, 広範な環境条件におけるベントナイト・珪砂混合体中の炭素鋼の腐食挙動, 第 70 回材料と環境討論会 予稿集, A-111, pp.37-38, 2023.

谷口直樹, 川崎学, 内藤守正, 緩衝材中における炭素鋼の腐食挙動の実験的検討－Ⅰ－10 年間浸漬試料の腐食生成物分析結果－, JAEA-Research 2008-108, 2008.

谷口直樹, 川崎学, 内藤守正, 低酸素濃度下での模擬地下水の飽和した圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動, 材料と環境, Vol. 59, No. 11, pp.418-429, 2010.

Van Aken, P.A., Miehe, G., Woodland, A.B. and Angel, R.J., Crystal structure and cation distribution in Fe_7SiO_{10} ("Iscorite"), European Journal of Mineralogy, 17, 723-731, 2005.

和田隆太郎, 山口憲治, 西村務, 栗本宣孝, 西村智明, 竹内靖典, 藤原和雄, 地層処分環境下におけるオーバーパック材料の超長期試験研究, 核燃料サイクル開発機構業務委託報告書, JNC TJ8400 2002-001, 2002.

Wersin, P., Hadi, J., Kiczka, M., Jenni, A., Grenèche, J.M., Diomidis, N., Leupin, O.X., Svensson, D., Sellin, P., Reddy, B., Smart, N., Zhang, Z.: Unravelling the corrosion processes at steel/bentonite interfaces in in situ tests. Mater. Corros., 2023.

de Combarieu, G., Barboux, P., Minet, Y., Iron corrosion in Callovo-Oxfordian argilite: from experiments to thermodynamic/kinetic modelling Phys. Chem. Earth, 32 (1–7), pp. 346-358, 2007.

Lantenois, S., Lanson, B., Muller, F., Bauer, A., Jullien, M., Plancon, A., Experimental study of smectite interaction with metal Fe at low temperature: 1. Smectite destabilization, Clays Clay Miner., 53, pp. 597-612, 2005.

Perronnet, M., Jullien, M., Villiéras, F., Raynal, J., Bonnin, D., and Bruno, G., Applied Clay Science, 187-202.,2008.

Ishidera, T., Miyamoto, S., and H. Sato, S., Effect of Sodium Nitrate on the Diffusion of Cl- and I- in Compacted Bentonite”, Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol.45, pp.610-616, 2008.

陶山忠宏, 笹本広, JNC 収着データベース(JNC-SDB)の更新：1998 年～2003 年までに公開された文献データの追加(技術報告), 日本原子力研究開発機構 研究開発報告書類 JNC-TN8410 2003-018,2004.

Ueno Y, Sakurai T, Okada S, Abe K and Misaka T, Human bitter taste receptors hTAS2R8 and hTAS2R39 with differ ential functions to recognize bitter peptides. Biosci Biotech nol Biochem 75, 1188-1190., 2011.

Laetsch, T. and Downs, R., Software for identification and refinement of cell parameters from powder diffraction data of minerals using the RRUFF project and American Mineralogist crystal structure database. Abstract from the 19th General Meeting of the International Mineralogical Association, Kobe, Japan, 23-28.,2006

Lotz, S., Nel, A. E., Wicks, R. T., Roberts, O. W., Engelbrecht, N. E., Strauss, R. D., Botha, G. J. J., Kontar, E. P., Pitňa, A., Bale, S. D., The Radial Variation of the Solar Wind Turbulence Spectra near the Kinetic Break Scale from Parker Solar Probe Measurements, The Astrophysical Journal, Volume 942, Issue 2, id.93, 10 pp., 2023.

Schlegel, M.L., Bataillon, C., Benhamida, K., Blanc, C., Menut, D. and Lacour, J-L., Metal corrosion and argillite transformation at the water-saturated, high-temperature iron–clay interface: A microscopic-scale study, Applied Geochemistry, 23, pp. 2619-2633, 2008.

Schlegel, M.L., Martin, F., Fenartb, M., Blanca, C., Varleta, J., Foyc, E., Prêtd, D., Trcerae, N., Corrosion at the carbon steel-clay compact interface at 90°C: Insight into short- and long-term corrosion aspects, Corrosion Science 152 31-44, 2019.

Leon, Y., Dillmann, P., Neff, D., Schlegel, M L., Foya, E., and Dynesc, J J., Interfacial layers at a nanometre scale on iron corroded in carbonated anoxic environments, The Royal Society of Chemistry, 20101-20115, 7, 2017.

Schlegel, M L., Bataillon, C., Brucker, F., Blanc, C., Prêt, D., Foy, E., Chorro, M., Corrosion of metal iron in contact with anoxic clay at 90 °C: Characterization of the corrosion products after two years of interaction, Applied Geochemistry 51, 1-14, 2014.

Schlegel, M.L., Martin, F., Fenart, M., Blanc, C., Varlet, J., Foy, E., Prêt, D., Trcera, N., Corrosion at the carbon steel-clay compact interface at 90°C: Insight into short- and long-term corrosion aspects, Corrosion Science 152, 31-44, 2019.

Leon, Y., Saheb, M., Drouet, E., Neff, D., Foy, E., Leroy, E., Dynes, J.J., Dillmann, P., Interfacial layer on archaeological mild steel corroded in carbonated anoxic environments studied with coupled micro and nano probes, Corrosion Science 88, 23-35, 2014.

Owen, J., Ropital, F., Joshi, G.R., Kittel, J., Barker, R., Galvanic effects induced by siderite and cementite surface layers on carbon steel in aqueous CO_2 environments, Corrosion Science 209, 110762, 2022.

Lotz, H., Neff, D., Mercier-Bion, F., Bataillon, C., Nuns, N., Dillmann, P., ^{13}C isotopic labeling to decipher the iron corrosion mechanisms in a carbonated anoxic environment, Materials and Corrosion, 1-10, 2024.

(2.2.3)

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ー, JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005 年 9 月.

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

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 2 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 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.

市毛悟, 山口耕平, 小田治恵, ベントナイトの長期安定性の評価試験―セメント系材料と海水系地下水との反応により形成されるアルカリ性間隙水の影響―, JAEA-Technology 2009-065, 2009.

Knauss, K. G., and Wolery, T. J., The dissolution kinetics of quartz as a function of pH and time at 70 C. Geochimica et Cosmochimica Acta, 52, 43-53, 1988.

小林隆司, 実験計画法（その 13), 日本ゴム協会誌, 37, 209-221, 1964.

Mihara, M., Iriya, K., and Torii, K., Development of low-alkaline cement using pozzolans forgeological disposal of long-lived radioactive waste. Journal of Japan Civil

EngineeringSociety, 64(1), 92-103, 2008.
日本原子力研究開発機構,平成 25 年度　地層処分技術調査等事業　セメント材料影響評価技術高度化開発報告書　平成 26 年 3 月, 2014.
Okajima, S., Mori, T., Kikuchi, N., Tanaka, M., and Miyazaki, M., Application of a first-order method to estimate the failure probability of component subjected to thermal transients for optimization of design parameters. Mechanical Engineering Journal, 10, 23-00042, 2023.
大和田朗, 佐藤卓見, 平林恵理, 新開発乾式法による脆弱岩石試料の薄片・研磨薄片製作, 地質調査研究報告, 第 64 巻, 第 7/8 号, pp.221-224, 2013.
Plettinck, S., Chou, L., and Wollast, R., Kinetics and mechanisms of dissolution of silica at room temperature and pressure. Mineralogical Magazine, 58A, 728-729, 1994.
佐治慎, 伊藤雅和, 柴田雅博, 神徳敬, 磯貝武司, 河川水と接触したベントナイト鉱床の化学特性変化－ 試料採取と分析結果 －, JNC TN8400 2005-017, 2005.
柴田真仁, 坂本浩幸, 佐藤努, 圧縮ベントナイトとセメント界面における相互作用の評価, 日本原子力学会和文論文誌, 10 巻, 2 号, 2011, pp.91-104.
高田圭, 内川勝, 梶本和博, 出口淳一, 直交表を使ったソフトウエアのバグ発見の効率化, 品質工学, 8, 60-64, 2000.
Wilkin, R. T., and Barnes, H. L., Nucleation and growth kinetics of analcime from precursor Na-clinoptilolite. American Mineralogist, 85, 1329-1341, 2000.
横山信吾, 中村邦彦, 田中幸久, 廣永道彦, ベントナイトのアルカリ変質に関する文献調査, 電力中央研究所報告, N05042, 2006.

(2.2.4)

Alexander, M.G., Bertron, A., and De Belie, N., Performance of cement-based materials in aggressive aqueous environments. State-of-the-Art Report, RILEM TC 211-PAE, Springer, Dordrecht, Netherlands, 2014.
Anraku, S., Walker, C.S., Oda, C., Mihara, M., and Honda, A., Hydration and degradation of High content Fly ash Silica fume Cement, 15th International Congress on the Chemistry of Cement, 16-20th September 2019, Prague, Czech Republic, 2019.
Blanc, P., Bourbon, X., Lassin, A., and Gaucher, E.C., Chemical model for cement-based materials: Temperature dependence of thermodynamic functions for nanocrystalline and crystalline C-S-H phases, Cement and Concrete Research, Vol.40, No.6, pp.851-866, 2010.
Bonaccorsi, E., Merlino, S., and Kampf, A.R., The Crystal Structure of Tobermorite 14 Å (Plombierite), a C-S-H Phase, Journal of the American Ceramic Society, Vol.88, No.3, pp.505-512, 2005.
Cox, J.D., CODATA recommended key values for thermodynamics, 1977 Report of the CODATA task group on key values for thermodynamics, 1977, Journal of Chemical Thermodynamics, Vol.10, pp.903-906, 1978.
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, FEPC TRU TR2 2005 02, 2005.
土木学会, コンクリート標準示方書 [設計編], 727p, 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 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 回収可能性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 回収可能性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 回収可能性技術高度化開発報告書 3 ヵ年取りまとめ報告書, 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 回収可能性技術高度化開発報告書, 2023b.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発, 2019.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 平成 31 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分に関する技術開発, 2020.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 2 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2021.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 3 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2022.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 4 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 2023.
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 6-8 影響分析に用いた現象解析, NUMO-TR-20-03, 272p, 2021.
Gaucher, E.C. and Blanc, P. Cement/clay interactions－A review: Experiments, natural analogues, and modeling, Waste Management, Vol. 26, pp. 776-788, 2006.
Gisby, J.A., Davies, R.H., Dinsdale, A.T., Tyrer, M., Glasser, F.P., Hill, J., Livesey, P., and Walker, C.S., C-S-H solubility modeling at different temperatures, 12th International Congress on the Chemistry of Cement, 8th-13th July 2007, Montreal, Canada, 2007.
Hewlett, P.C., Lea's chemistry of cement and concrete (4th edition), Elsevier Ltd., UK, 2004.
Hong, S.Y., and Glasser, F.P., Alkali binding in cement pastes Part I: The C-S-H phase, Cement and Concrete Research, Vol.29, No.12, pp.1893-1903, 1999.
Iriya, K., Matsui, A., and Mihara, M., Study on applicability of HFSC for radioactive waste repositories, 7th International Conference Proceedings on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, September 26th-30th 1999, Nagoya, Japan, 1999.
亀井玄人, 本田明, 三原守弘, 小田治恵, 村上裕, 増田賢太, 山口耕平, 松田節郎, 市毛悟, 高橋邦明, 目黒義弘, TRU 廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発 平成 20 年度報告, JAEAResearch-2009-046, 2010.
亀井玄人, 本田明, 三原守弘, 小田治恵, 村上裕, 増田賢太, 山口耕平, 松田節郎, 市毛悟, 高橋邦明, 目黒義弘, 山口大美, 榊原哲朗, 佐々木紀樹, TRU 廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発 平成 19 年度報告, JAEA-Research-2008-082, 2008.
地盤工学会, 低透水性材料の透水試験方法, JGS 0312-2018, 30p, 2018.
笠井芳夫（編著）, コンクリート総覧, 技術書院, 1998.
Kulik, D., Miron, G.D., and Lothenbach, B., A structurally-consistent CASH+ sublattice solid solutoin model for fully hydrated C-S-H phases: Thermodynamic basis, methods , and Ca-Si-H2O core sub-model, Cement and Concrete Research, Vol.151, pp.106585, 2022.

蔵重勲, 廣永道彦, 地下水中炭酸水素イオンによるセメント系材料の溶脱抑制メカニズムに関する検討（その１）, 電力中央研究所報告, N06028, 24p, 2007.
Le Saoût, G., Lothenbach, B., Hori, A., Higuchi, T., and Winnefeld, F., Hydration of Portland cement with additions of calcium sulfoaluminates, Cement and Concrete Research, Vol.43, pp.81-94, 2013.
Lothenbach, B., Matschei, T., Möschner, G., and Glasser, F.P., Thermodynamic modelling of the effect of temperature on the hydration and porosity of Portland cement, Cement and Concrete Research, Vol.38, No.1, pp.1-18, 2008.
Maeshima, T., Noma, H., Sakiyama, M., and Mitsuda, T., Natural 1.1 and 1.4 nm tobermorites from Fuka, Okayama, Japan: Chemical analysis, cell dimensions, 29Si NMR and thermal behavior, Cement and Concrete Research, Vol.33, pp.1515-1523, 2003.
Merlino, S., Bonaccorsi, E., and Armbruster, T., The real structure of tobermorite 11 Angstrom: normal and anomalous forms, OD character and polytypic modifications, European Journal of Mineralogy, Vol.13, No.3, pp.577-590, 2001.
Metcalfe, R., and Walker, C., Proceedings of the International Workshop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environments, NUMO-TR-04-05, 190p., NUMO, Tokyo, Japan, 2004.
Mihara, M., Iriya, K., and Torii, K., Development of low-alkaline cement using pozzolans for geological disposal of long-lived radioactive waste, Journal of Japan Civil Engineering Society, Vol.64, No.1, pp.92-103, 2008.
Mochizuki, A., Ishii, E., Miyakawa, K., and Sasamoto, H., Mudstone redox conditions at the Horonobe Underground Research Laboratory, Hokkaido, Japan: Effects of drift excavation, Engineering Geology, Vol.267, No.105496, 2020.
村田二郎, コンクリートの水密性とコンクリート構造物の水密設計, 技報堂, 2002.
Myers, R.J., Thermodynamic modelling of CaO-Al2O3-SiO2-H2O based cements, Ph.D. thesis, 362p., University of Sheffield, Sheffield, U.K., 2015.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 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.
日本原子力研究開発機構, 平成２３年度地層処分技術調査等事業「ＴＲＵ廃棄物処分技術：セメント材料影響評価技術高度化開発」報告書, 2012.
日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度高レベル 放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業「処分システム評価確証 技術開発」報告書, 2016.
日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度高レベル 放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業「処分システム評価確証 技術開発」報告書, 2018.
Parkhurst, D.L., and Appelo, C.A.J., Description of input and examples for PHREEQC version 3 - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, Denver, CO, 2013.
Pelletier-Chaignat, L., Winnefeld, F., Lothenbach, B., Le Saout, G., Jorg Muller, C., and Famy, C., Influence of the calcium sulphate source on the hydration mechanism of Portland cement-calcium sulphoaluminate clinker-calcium sulphate binders, Cement and Concrete Composites, Vol.33, No.5, pp.551-561, 2011.
Sarkar, A.K., Barnes, M.W., and Roy, D.M., Longevity of borehole and shaft sealing materials:

thermodynamic properties of cements and related phases applied to repository sealing, Technical Report ONWI-201, 52p., Office of Nuclear Waste Isolation & Battelle Memorial Institute, Springfield, VA, U.S.A., 1982.

Savage, D., Walker, C.S., Arthur, R.C., Rochelle, C.A., Oda, C., and Takase, H., Alteration of bentonite by hyperalkaline fluids: A review of the role of secondary minerals, Physics and Chemistry of the Earth, Vol.32, pp.287-297, 2007.

Schöler, A., Lothenbach, B., Winnefeld, F., and Zajac, M., Hydration of quaternary Portland cement blends containing blast-furnace slag, siliceous fly ash and limestone powder, Cement and Concrete Composites, Vol.55, pp.374-382, 2015.

Thrailkill, J., and Robl, T.L., Carbonate geochemistry of vadose water recharging limestone aquifers, 26th International Geological Congress, 1982, Paris, France

Walker, C.S., Arthur, R.C., Wakiya, A., Sutou, S., Sasamoto, H., Oda, C., Mihara, M., and Honda, A., The JAEA thermodynamic database for reactions between groundwater, cement, clay, zeolite and/or rock forming minerals, Goldschmidt2016, June 26th-July 1st 2016, Yokohama, Japan, 2016.

Walker, C.S., Sutou, S., Oda, C., Mihara, M., and Honda, A., Calcium silicate hydrate (C-S-H) gel solubility data and a discrete solid phase model at 25oC based on two binary non-ideal solid solutions, Cement and Concrete Research, Vol.79, pp.1-30, 2016b.

(2.2.5)

Aoyagi, K., and Ishii, E., A Method for Estimating the Highest Potential Hydraulic conductivity in the Excavation Damaged Zone in Mudstone, Rock Mechanics and Rock Engineering, Vol. 52, pp.385-401, 2018.

Ishii, E., Far-field stress dependency of the failure mode of damage-zone fractures in fault zones: Results from laboratory tests and field observations of siliceous mudstone, Journal of Geophysical Research: Solid Earth, Vol. 121, No.1, pp.70-91, 2016.

大久保誠介，金豊年：非線形粘弾性モデルによる円形坑道周辺岩盤挙動のシミュレーショ ン，資源と素材，Vol.109，No.3，pp.209-214，1993.

福井勝則，羽柴公博，松井裕哉，結晶質岩を対象とした長期岩盤挙動評価手法に関する研究（共同研究），JAEA-Research 2017-010，日本原子力研究開発機構, 2017.

船戸明雄，工藤里絵，田中荘一，原位置岩盤の長期クリープ試験に及ぼす諸要因に関する検討，深田地質研究所年報, No.18, p.173-191, 2017.

Gao, F. and Han, L. Implementing the Nelder-Mead simplex algorithm with adaptive parameters, Computational Optimization and Applications. Vol.51(1), pp.259-277, 2012.

原子力環境整備促進・資金管理センター，日本原子力研究開発機構，令和 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 回収可能性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 回収可能性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 回収可能性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，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 地層処分施設閉鎖技術確証試験報告書，2023.

Hashiba, K., Fukui, K., Sugita, Y. and Aoyagi, K., Mechanical and rheological characteristics of the siliceous mudstone at Horonobe Underground Research Laboratory site, Proceedings of the World Tunnel Congress 2017 – Surface challenges – Underground solutions, Bergen, Norway, 2017.

Hashiba, K., Fukui, K., Kataoka, M. and Chu, S.Y., Effect of water on the strength and creep lifetime of andesite, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 108, 37-42, 2018.

Hashiba, K., Fukui, K. and Kataoka, Effect of water on the strength and loading-rate dependence of andesite, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, 117, 142-149, 2019.

羽柴公博, 福井勝則, 包 添書, 岩石の飽和度を考慮したコンプライアンス可変型粘弾性モデルに関する考察, 材料, Vol.71, No.2, p.181-188, 2022.

片岡みなみ, 包 添書, 羽柴公博, 福井勝則, 水飽和度が岩石の一軸圧縮下での応力−歪曲線に与える影響, Journal of MMIJ, Vol.133, No.6, 2017.

OECD/NEA, International Features, Events and Processes (IFEP) List for the Deep Geological Disposal of Radioactive Waste (Version 3.0), Paris, France, 2019.

(2.2.6)

Bharmoria, P., Gehlot, P. S., Gupta, H. and Kumar, A. Temperature-dependent solubility transition of Na_2SO_4 in water and the effect of NaCl therein: solution structures and salt water dynamics. The journal of physical chemistry B, 118(44), 12734-12742, 2014.

Ferrage, E., Lanson, B., Sakharov, B. A. and Drits, V. A., Investigation of smectite hydration properties by modeling experimental X-ray diffraction patterns: Part I. Montmorillonite hydration properties. American Mineralogist, 90(8-9), 1358-1374, 2005.

Fugazzotto, M., Cultrone, G., Mazzoleni, P. and Barone, G., Suitability of ceramic industrial waste recycling by alkaline activation for use as construction and restoration materials. Ceramics International, 49(6), 9465-9478, 2023.

Gaines Jr, G. L. and Thomas, H. C., Adsorption studies on clay minerals. II. A formulation of the thermodynamics of exchange adsorption. The Journal of Chemical Physics, 21(4), 714-718, 1953.

Hedström, M. and Karnland, O., Ca/Na selectivity coefficients from the Poisson–Boltzmann theory. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, 36(17-18), 1559-1563, 2011.

Hemingway, B. S. and Robie, R. A., Thermodynamic properties of zeolites: low-temperature heat capacities and thermodynamic functions for phillipsite and clinoptilolite. Estimates of the thermochemical properties of zeolitic water at low temperature. American Mineralogist, 69(7-8), 692-700, 1984.

Hill, A. E. and Wills, J. H., Ternary systems. XXIV. Calcium sulfate, sodium sulfate and water. Journal of the American Chemical Society, 60(7), 1647-1655, 1938.

伊藤雅和, 岡本真由美, 鈴木啓三, 柴田雅博, 佐々木康雄, ベントナイトの鉱物組成分析, 日本原子力学会誌, 36, 1055-1058, 1944.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 31 年度 地層処分技術調査等事業 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 地層処分技術調

査等事業 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 地層処分技術調査等事業 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 地層処分技術調査等事業 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.
Johnson, G. K., Tasker, I. R., Jurgens, R. and O'Hare, P. A. G., Thermodynamic studies of zeolites: clinoptilolite. The Journal of Chemical Thermodynamics, 23(5), 475-484, 1991.
Kamei, G., Oda, C., Mitsui, S., Shibata, M., and Shinozaki, T, Fe (II)–Na ion exchange at interlayers of smectite: adsorption–desorption experiments and a natural analogue. Engineering Geology, 54(1-2), 15-20, 1999.
Karnland, O., Birgersson, M., and Hedström, M., Selectivity coefficient for Ca/Na ion exchange in highly compacted bentonite. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, 36(17-18), 1554-1558, 2011.
Kumpulainen, S., Carlsson, T., Muurinen, A., Kiviranta, L., Svensson, D., Sasamoto, H.,Yui, M., Wersin, P., and Rosch, D., Long-term alteration of bentonite in the presence of metallic iron, SKB Report R-10-52, Stockholm, Sweden, 2010.
Lothenbach, B., Kulik, D. A., Matschei, T., Balonis, M., Baquerizo, L., Dilnesa, B., Miron, G. D. and Myers, R. J., Cemdata18: A chemical thermodynamic database for hydrated Portland cements and alkali-activated materials. Cement and Concrete Research, 115, 472-506, 2019.
Martin, F., Perrin, S., Fenart, M., Schlegel, M. and Bataillon, C., On corrosion of carbon steels in Callovo-Oxfordian clay: Complementary EIS, gravimetric and structural study providing insights on long term behaviour in French geological disposal conditions. Corrosion Engineering Science and Technology, 49(6), 460–466, 2014.
Matamoros-Veloza, A., Barker, R., Vargas, S., and Neville, A. (2020). Iron calcium carbonate instability: structural modification of siderite corrosion films. ACS Applied Materials & Interfaces, 12(43), 49237-49244, 2022.
Ochs, M., Boonekamp, M., Wanner, H., Sato, H. and Yui, M., A quantitative model for ion diffusion in compacted bentonite. Radiochimica Acta, 82, 437-444, 1988.
Pusch, R., The Buffer and Backfill Handbook Part 2: Materials and techniques. SKB Technical Report TR-02-12. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co (SKB), Stockholm, Sweden, 2001.
Pusch, R., Kasbohm, J., Pacovsky, J. and Cechova, Z., Are all smectite clays suitable as “buffers”?, Clay in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement — Part 1. Physics and Chemistry of the Earth, 32, 116–122, 2007.
Pusch, R., Kasbohm, J. and Thao, H.T.M., Chemical stability of montmorillonite buffer clay under repository-like conditions – A synthesis of relevant experimental data. Applied Clay Science, 47, 113 – 119, 2010.
Pusch, R. and Madsen, F.T., Aspects of the illitization of the Kinnekulle bentonites. Clays and Clay Minerals, 43, 133-140, 1995.
Sato, T., Watanabe, T. and Otsuka, R., Effects of layer charge, charge location, and energy change on expansion properties of dioctahedral smectites. Clays and Clay Minerals, 40(1), 103-113, 1992.

Schlegel, M. L., Bataillon, C., Benhamida, K., Blanc, C., Menut, D. and Lacour, J. L., Metal corrosion and argillite transformation at the water-saturated, high-temperature iron-clay interface: A microscopic-scale study. Applied Geochemistry, 23(9), 2619–2633, 2008.
谷口直樹, 川崎学, 内藤守正, 低酸素濃度下での模擬地下水の飽和した圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動. 材料と環境, 59(11), 418-429, 2010.
Wersin, P., Johnson, L. and McKinley, I., Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100ºC: A critical review. Physics and Chemistry of the Earth, 32, 780-788, 2007.

(2.3.1)

日本原子力研究開発機構, 平成 19 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成 20 年 3 月, 2008.
日本原子力研究開発機構, 平成 20 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成 21 年 3 月, 2009.
日本原子力研究開発機構, 平成 21 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成 22 年 3 月, 2010.
日本原子力研究開発機構, 平成 22 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成 23 年 3 月, 2011.
日本原子力研究開発機構, 平成 23 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成 24 年 3 月, 2012.
日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム化学影響評価高度化開発報告書 平成 25 年 3 月, 2013.
日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成 26 年 3 月, 2014.
日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成 27 年 3 月, 2015.
中山雅, 幌延深地層研究計画におけるオーバーパック腐食試験; 模擬オーバーパック、緩衝材およびヒーターの製作、設置, JAEA-Technology, 2018-006, 2018.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書 平成 31 年 3 月, 2019.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書 令和 2 年 3 月, 2020.
日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 令和 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 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 5 年 3 月, 2023.
Pruess, K., TOUGH2 – A General- purpose numerical simulator for multiphase fluid and heat flow, LBL20700 Lawrence Berkeley National Laboratory, 1991.
日本原子力研究開発機構, 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.
中山　雅, 幌延深地層研究計画；令和 5 年度調査計画書, JAEA-Review 2023-019, 2023.
松本一浩, 菅野毅, 藤田朝雄, 鈴木英明, 緩衝材の飽和透水特性, 動力炉・核燃料開発事業団報告書, PNC-TN8410 97-296, 1997.
菊池広人, 棚井憲治, 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8430 2004-005, 2005.
菊池広人, 棚井憲治, 松本一浩, 緩衝材の飽和透水特性-II, 海水性地下水が緩衝材の透水性に及ぼす影響, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TN8430 2003-002, 2003.
小田治恵，柴田雅博，ベントナイト-水相互作用の実験とモデル化，JNC TN8400 99-032, 1999.
van Genuchten, M. Th., A closed-form equation for predicting hydraulic of unsaturated soils, Soil Science Society American Journal 44, pp.892-898, 1980.
鈴木英明, 高山裕介, ニアフィールドにおける過渡期の熱-水-応力連成挙動に及ぼす緩衝材の密度変化の影響評価（受託研究）, JAEA-Research 2020-015, 2020.
大野宏和，高山裕介，中山雅，幌延 URL にける人工バリアの性能確認試験；熱－水－応力連成解析検討，日本原子力学会 2019 年春の年会，2019.
Corey, A. T., The interrelation between gas and oil relative permeabilities, Producers Monthly, vol.19, pp38-41, 1954.
ENRESA, FEBEX project final report, publication tecnica 1/2000, 2000.
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.
菊池広人, 棚井憲治，緩衝材の熱物性試験（Ⅲ）－面熱源法による緩衝材熱物性の取得－，JNC TN8430-2003-009, 2003.
Börgesson, L. and Hernelind, J.，Coupled thermo-hydro-mechanical calculations of the water saturation phase of a KBS-3 deposition hole. TR-99-41, 1999.
核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 -地層処分研究開発第 2 次取りまとめ-分冊 2 地層処分の工学技術, JNC TN1400 99-022, 1999a.
核燃料サイクル開発機構, わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼性 -地層処分研究開発第 2 次取りまとめ-分冊 3 地層処分システムの安全評価, JNC TN1400 99-023, 1999b.
日本原子力研究開発機構, 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.
中山雅, 大野宏和, 中山真理子, 小林正人, 幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験；計測データ集（平成 29 年度）, JAEA-Data/Code-2019-003, 2019.
中山雅, 松﨑達二, 丹生屋純夫：幌延深地層研究計画における人工バリア性能確認試験, -大口径掘削機の開発，模擬オーバーパック，緩衝材および埋め戻し材の製作-, JAEA-Research 2016-010, 2016.
望月陽人，宮川和也，笹本　広，幌延深地層研究センター350m 調査坑道における地下水の地球化学モニタリング装置による地下水圧の連続観測結果(2016～2018 年度), JAEA-Data/Code 2019-014, 2019.
藤田朝雄, 谷口直樹, 松井裕哉, 棚井憲治, 西村繭果, 小林保之, 平本正行, 前川恵輔, 澤田淳, 牧野仁史, 笹本広, 吉川英樹, 柴田雅博, 若杉圭一郎, 濱克宏, 操上広志, 國丸貴紀, 石井英一, 竹内竜史, 中野勝志, 太田久仁雄, 瀬尾俊弘, 宮原要, 内藤守正, 油井三和, 幌延深地層

研究計画における地上からの調査研究段階（第 1 段階）研究成果報告書 分冊「地層処分研究開発」, JAEA-Research 2007-045, 2007.
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.
山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘道, 各合牧人, 田所照夫, 中垣真一, 幌延深地層研究計画における試錐調査（HDB-6, 7, 8）のうち HDB-6 孔, JNC TJ5400 2005-004, 2005.
太田久仁雄, 阿部寛信, 山口雄大, 國丸貴紀, 石井英一, 操上広志, 戸村豪治, 紫野一則, 濱 克寛, 松井裕哉, 新里忠史, 高橋一晴, 丹生屋純夫, 大原英史, 浅森浩一, 森岡宏之, 舟木泰智, 茂田直孝, 福島龍朗, 幌延深地層研究計画における地上からの調査研究段階（第 1 段階）研究成果報告書 分冊「深地層の科学的研究」, JAEA-Research 2007-044, 2007.
木村誠, 九石正美, 藤田朝雄, 中間茂雄, 鈴木英明, 緩衝材中の化学影響評価に向けた熱-水-応力-化学連成解析モデルの開発, JAEA-Research 2010-034, 2010.
土木学会, コンクリート標準示方書「設計編」（2007 年制定）, 2007.
Sugita Y., Kwon S., Lee C., Massmann J., Pan P-Z and Rutovist J., DECOVALEX-2015 project Task B2 final report, KTH Architecture and the Built Environment, 2016.
日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 地層処分技術調査等事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成 28 年 3 月, 2016.
Arthur, R. C, Sasamoto, H., Shibata, M., Yui, M. and Neyama, A, Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations, JNC-TN8400 99-079, 1999.

(2.3.2)
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.
Benbow, S. J., Kawama, D., Takase, H., Shimizu, H., Oda, C., Hirano, F., Takayama, Y., Mihara, M. and Honda, A., A Coupled Modelling Simulator for Near-Field Processes in Cement Engineered Barrier Systems for Radioactive Waste Disposal, Crystals, vol. 10, No.767, 2020.
三原守弘, 佐藤信之, 大野進太郎, 森川誠司, TRU 廃棄物地層処分施設の力学挙動解析コード(MACBECE)の開発, JAEA-Data/Code 2009-026, 2010.
平野史生, 大谷芳輝, 京川裕之, 三原守弘, 清水浩之, 本田明, TRU 廃棄物処分システムの性能評価の観点からの人工バリアの透水性に対するセメント系材料のひび割れの影響に関する検討, 日本原子力学会和文論文誌, vol. 15, No.2, pp.97-114, 2016.
日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 処分システム評価確証技術開発報告書 平成 30 年 3 月, 2018b.
日本原子力研究開発機構, 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.

(2.3.3)
ASTME1530-06, Standard test method for evaluating the resistance to thermal transmission of materials by the guarded heat flow meter technique, doi: 10.1520/E1530-06, 2006.
Birkholzer, J., Rutqvist, J., Sonnenthal, E., & Burr, D., DECOVALEX-THMC Project Task D Long-Term Permeability/Porosity Changes in the EDZ and Near Field due to THM and

THC Processes in Volcanic and Crystalline-Bentonite Systems Final Report, SKI Report, SKI-R-08-45, 2008.
藤田朝雄, 杉田 裕, 納多 勝, 幾世橋広, 緩衝材の熱物性試験, 動力炉・核燃料開発事業団技術資料, PNC TN1410 92-052, 1992.
原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成２９年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（処分システム工学確証技術開発）報告書（第 3 分冊）人工バリアと周辺岩盤の長期挙動評価手法の構築, 2018
JIS Z 2285: 2003, 金属材料の線膨張係数の測定方法, 2003.
菊池広人, 棚井憲治, 緩衝材の熱物性測定試験(III)−面熱源法による緩衝材熱物性の取得−, 核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TN8430 2003-009, 2003.
菊池広人, 棚井憲治, 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験, 核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TN8430 2004-005, 2005.
小峯秀雄, 緒方信英：高レベル放射性廃棄物処分のための緩衝材・埋戻し材の膨潤評価式の提案―砂とベントナイトの配合割合およびベントナイト中の陽イオンの種類・組成の影響―, 電力中央研究所研究報告書, U99013, 1999.
長崎誠三, 高木 豊, 高温に於ける比熱の測定法について, 応用物理, 17, 5, 104-108, 1948.
中島雅之, 納谷朋広, 荒牧雄馬, 辻野敏文, 渡邊保貴,岡田哲実, 西本壮志, 石井智子, 地層処分場の人工バリアと周辺岩盤の THM 長期挙動評価手法の構築に向けて（その３）－数値解析に連動した要素試験（緩衝材）－, 第 52 回地盤工学研究発表会講演集, 1043, 2081-2082, 2017.
中村邦彦, 田中幸久, 高レベル放射性廃棄物処分孔での廃棄体の沈下挙動-遠心模型実験と簡易沈下予測法の提案-, 電力中央研究所研究報告書, U03074, 2004.
中村邦彦, 田中幸久, 高レベル放射性廃棄物処分孔でのオーバーパックの沈下挙動－ベントナイト種類の影響と沈下予測手法の高度化－, 電力中央研究所報告, N05029, 2006.
中村邦彦, 田中幸久, ベントナイトの種類と密度がオーバーパックの沈下量に与える影響, 土木学会論文集 C, 65, 1, 85–96, 2009.
日本原子力研究開発機構, 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, 2023.
西本壮志, 岡田哲実, 澤田昌孝, 遠心力載荷装置を用いた高レベル放射性廃棄物 処分場周辺の長期挙動評価（その２）－ニアフィールド模型試験法の確立と等方応力拘束条件下における長期挙動－, 電力中央研究所研究報告書, N11040, 2012.
西本壮志, 岡田哲実, 澤田昌孝, 遠心力載荷装置を用いた高レベル放射性廃棄物 処分場周辺の長期挙動評価（その４） －加熱型廃棄体を用いた等方応力拘束条件下における 熱－水－応力連成模型実験－, 電力中央研究所研究報告書, N14003, 2014.
Nishimoto, S., Sawada, M., Okada, T., New Rapid Evaluation for Long-Term Behavior in Deep Geological Repository by Geotechnical Centrifuge. Part 1: Test of Physical Modeling in Near Field Under Isotropic Stress-Constraint Conditions, *Rock Mech. Rock Eng.*, 49, 8, 3323–3341, 2016.
Rutqvist, J., Börgesson, L., Chijimatsu, M., Kobayashi, A., Jing, L., Nguyen, T. S., Noorishad, J. and Tsang, C. F., Thermohydromechanics of partially saturated geological media: governing equations and formulation of four finite element models, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 38, 105-127, 2001.
佐藤 伸, 大野宏和, 棚井憲治, 山本修一, 深谷正明, 志村友行, 丹生屋純夫, 熱・流体・応力連成

解析による水蒸気が及ぼす再冠水時のバリア性能への影響, 地盤工学ジャーナル, 15, 3, 529-541, 2020.
澤田昌孝, 岡田哲実, 地下施設力学的相互作用解析のための軟岩クリープモデルの開発, 電力中央研究所研究報告書, N04028, 2005.
澤田昌孝, 岡田哲実, 長谷川琢磨：高レベル放射性廃棄物処分地下施設の長期挙動予測評価プログラムの開発―緩衝材膨潤評価式の数値モデル化と熱・水・応力連成解析スキームの構築―, 電力中央研究所研究報告書, N05028, 2006.
澤田昌孝, 岡田哲実, 西本壮志, 遠心力載荷装置を用いた高レベル放射性廃棄物処分場周辺の長期挙動評価（その３） －等温条件の模型試験に対する水・応力連成解析－, 電力中央研究所研究報告書, N11037, 2012.
Sawada, M., Nishimoto, S., Okada, T., New Rapid Evaluation for Long-Term Behavior in Deep Geological Repository by Geotechnical Centrifuge-Part 2: Numerical Simulation of Model Tests in Isothermal Condition, Rock Mech. Rock Eng., 50, 1, 159–169, 2017.
杉田 裕, 菊池広人, 星野笑美子, 幌延深地層研究計画で得られた掘削土を用いた埋め戻し材の特性試験(受託研究), JAEA-Data/Code 2020-017, 2021.
鈴木英明, 谷口航, 緩衝材の熱物性試験 (II), 核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TN8430 99-006, 1999.
鈴木英明, 高山裕介, 佐藤久, 綿引孝宜, 佐藤,大介, 熱 - 水 - 応力 - 化学連成解析モデルを用いた海水系地下水環境下における緩衝材の浸潤挙動評価（受託研究）, JAEA-Research, 2022-013, 2023.
谷口 航, 鈴木英明, 杉野弘幸, 松本一浩, 千々松正和, 柴田雅博, 熱的特性の緩衝材仕様に対する影響, 核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TN8430 99-052, 1999.
山本卓也, 下茂道人. 藤原 靖, 服部弘通, 名合牧人, 田所照夫, 中垣真一, 幌延深地層研究計画における試錐調査(HDB-6,7,8 孔)のうち HDB-6 孔, 核燃料サイクル開発機構報告書, JNC TJ5400 2005-004, 2004.
山本陽一, 後藤考裕, 北川義人, 渡邊保貴, 横山信吾, 新橋美里, 国内産ベントナイトおよびベントナイト混合土の基本特性データ（NUMO-電中研共同研究）, NUMO 個別技術報告書, NUMO-TR21-02, 2022.

3. 熱影響評価技術の高度化

3.1. 目的と 5 か年の計画

3.1.1. 目的

現在の人工バリアの概念では、緩衝材の熱的変質を防止する観点から、緩衝材の温度が 100℃以下となるように廃棄体間隔や坑道離間距離を設定することが基本的な考え方となっている（核燃料サイクル開発機構, 1999；原子力発電環境整備機構, 2021）。しかし、幅広い地質環境条件や緩衝材の不均質性、廃棄体定置の時期・位置の違いなどのために、緩衝材中の温度の時空間分布には不確実性がともなう。こうした不確実性に柔軟に対応するとともに、合理的かつ自由度の高い処分場や処分システムの設計を可能とする観点から、100℃という制限温度の緩和を検討する必要性が指摘されている。このような温度条件に対する不確実性への対応や処分サイトの地質環境条件などの様々な制約条件に柔軟に設計で対応する観点に加えて、人工バリアや処分場設計における温度条件に対する安全尤度を示す観点からも 100℃超を含む温度条件でのニアフィールドで生じる現象の理解を進めながら 100℃超を含む温度条件でのシナリオの整理等から進める必要がある。これまで、緩衝材の温度が 100℃を超えた状態で発生し得る現象に関する先行研究の事例調査に基づいて緩衝材の変質に関する既往知見の整理が行われた（中山、2022）。緩衝材が処分場設計における緩衝材の制限温度（100℃）を超えた条件での現象理解とモデルによる評価手法の構築が国際的にも実施されており（NAGRA, 2021）、100℃超の温度履歴を与えた場合に生じる緩衝材の変質や基本特性の変化を複数年程度の試験データに基づき評価する等の、100℃超を想定した際のシナリオ構築に資するための知見を取得していくことが重要である。このため、実際の地下環境で生じる 100℃超の温度条件での現象を把握するために幌延地下施設も活用して技術開発を行う。

3.1.2. 5 か年の計画

閉鎖後の緩衝材の浸潤挙動や 100℃超での水の物理状態は、坑道周辺の地下水位や圧力の回復状況に応じて変わり、坑道の開放期間（閉鎖までの期間）によっても影響を受けると想定される。例えば、図 3.1-1 に模式的に示すように、オーバーパック表面温度の経時変化に対して地下水の浸潤が早い場合のように温度がピークに達する前に緩衝材が十分浸潤するケース、オーバーパック表面の温度が低下してから地下水の浸潤が進むケース、これらの中間的なケースなどが考えられ、圧力と飽和水蒸気圧との兼ね合いにより水の物理状態も異なるなど熱、水、応力状態の組み合わせで多様なケースが想定される。

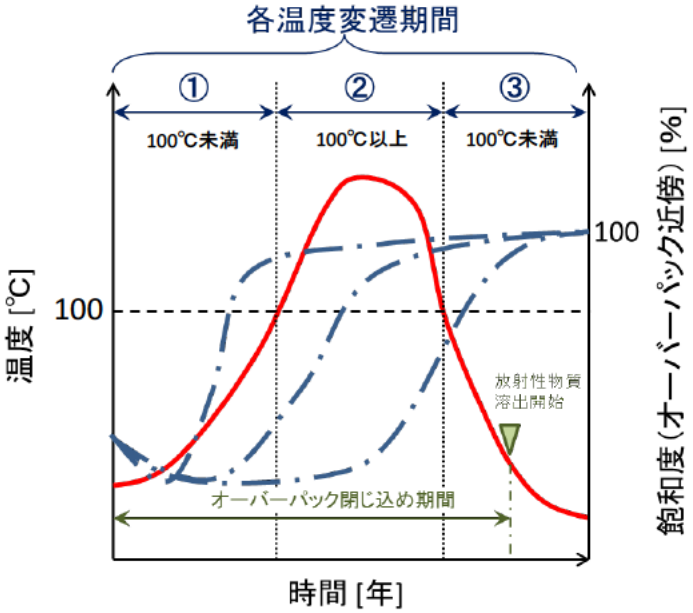


図 3.1-1　オーバーパック近傍での温度・飽和度変遷イメージ

一方、幌延の地下施設で行われている図 3.1-2 に示すフルスケールの人工バリア性能確認試験（中山ほか、2019）では、人為的に緩衝材外側から地下水を注水した条件であっても、図 3.1-3（中山、2023）に示すように模擬オーバーパック（以下、模擬 OP という）の表面温度が 90℃の高温環境下において緩衝材内部は乾燥状態になり、水の浸潤がほとんど進展せず、温度を低下させると内部への浸潤が促進されることが確認されている。

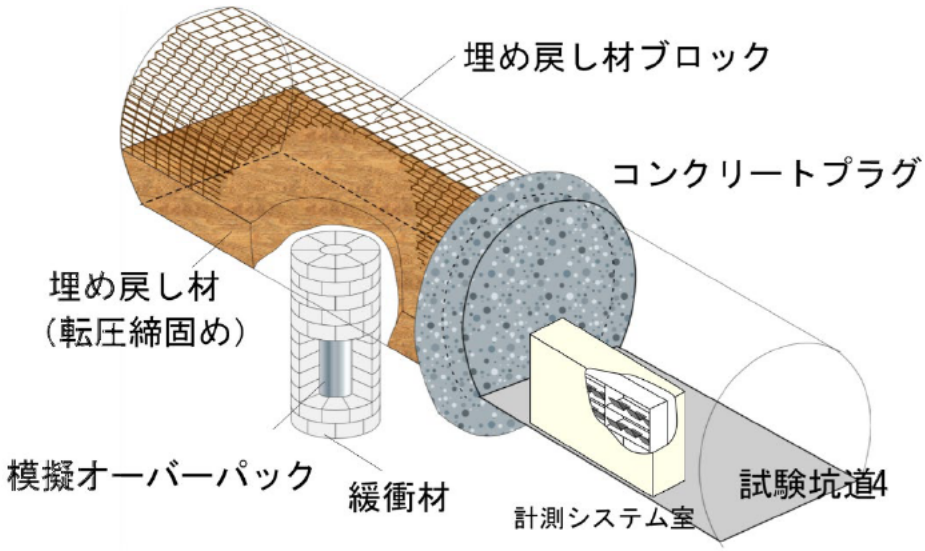


図 3.1-2　幌延地下研究施設における人工バリア性能確認試験（中山ほか、2019）

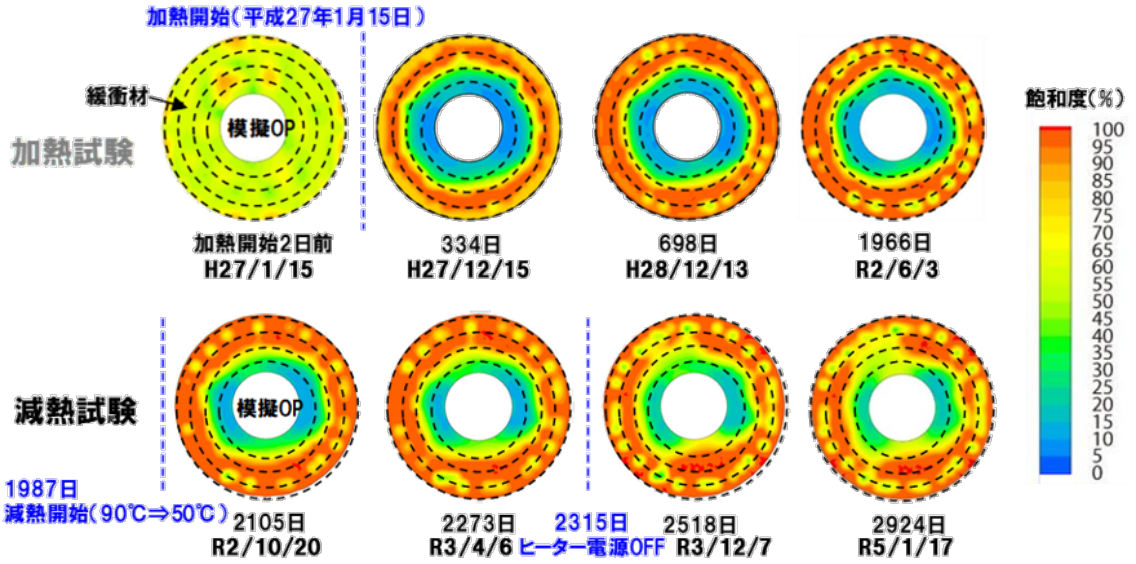


図 3.1-3　比抵抗トモグラフィによる人工バリア性能確認試験での緩衝材内水分分布測定例
（中山、2023 を編集）

本事業では、例えば、操業中の坑道の開放状態の維持や、閉鎖前の回収可能性の維持の期間など、地下水位や圧力の回復前にオーバーパック近傍で高温状態が達成される状況を想定する。人工バリア性能確認試験で観察されたように、高温下で緩衝材の水分が高温側から低温側へ移動するのに伴い模擬 OP 近傍で緩衝材が乾燥し、その後、温度低下に伴い高温履歴を経た緩衝材内へ地下水が浸潤する過程、で起こる現象に着目する。具体的には、図 3.1-4 に模式的に示すように、施工時の含水比から 100℃超で乾燥する過程で収縮し亀裂（クラック）が発生し（図 3.1-4 左）、温度低下の過程で再冠水、膨潤によって亀裂（クラック）が充填する（自己シール性）等の挙動（図 3.1-4 右）に着目し、以下 3 つの項目を設定して実施する。

① ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析
　空洞安定性の観点で設計される坑道離間距離や廃棄体定置間隔によって決定される。また、ガラス固化体の発熱量やニアフィールド構成要素の物性、構成要素間のギャップの存在によっても変わる。よって、制限温度を考慮しない場合におけるニアフィールドの温度分布、ガラス固化体の発熱量、材料物性値などを変えた場合の温度分布などを熱伝導解析によって把握する。
② 幌延地下施設での 100℃超条件における原位置試験
　高温下での緩衝材の乾燥収縮に伴うクラックの発生と温度低下後の再冠水挙動は成形された緩衝材の寸法やブロック継目の有無等によっても異なる可能性があることから、工学的規模の原位置試験により、100℃以上で加熱した際の緩衝材に生じる現象や、100℃以上の温度履歴を経た緩衝材や岩石への再冠水挙動等の観測を行う。
③ 100℃超を含む温度条件における緩衝材特性の評価
　人工バリア設置後の高温状態から温度が低下する過程での緩衝材の乾燥や再冠水挙動はオーバーパックに近い内側の領域と岩盤に近い外側の領域では異なると考えられ岩盤側とオーバーパック近傍の両方の条件を想定して緩衝材の特性を室内試験データ等に基づき評価する。

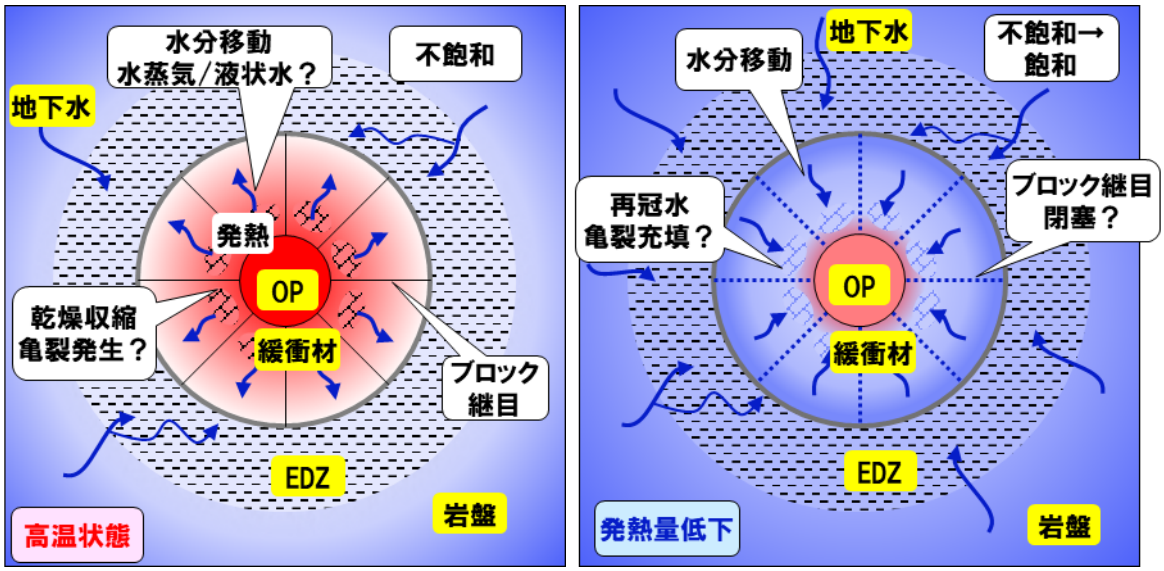


図 3.1-4　本事業で想定した人工バリア設置直後からの周辺環境の変遷に関するイメージ

3.2. ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析

3.2.1. 背景と目的

緩衝材内の 100℃超領域等のニアフィールドの温度分布を把握するため、 NUMO-SC（原子力発電環境整備機構, 2021）の坑道設計事例をベースに処分坑道中心間距離等を解析ケースとした熱伝導解析を実施した。NUMO-SC においては、表 3.2-1 に示すように、縦置き・ブロック方式および横置き・PEM 方式、パネル型の処分区画およびデッドエンド型の処分区画、岩種として深成岩類、新第三紀堆積岩類、先新第三紀堆積岩類、貯蔵期間として 30 年と 50 年に対し、処分坑道中心間距離の設定を行っている。ここでは、空洞の安定性が確保される条件と、熱伝導解析により緩衝材の最高温度が 100℃未満となる条件の二つを満足する最小距離が設定されている。その結果、表中の赤く囲われた条件が、緩衝材の最高温度が 100℃未満となる条件によって設定されたケースであり、その他の条件は空洞の安定性の観点から設定されたケースである。

ここでは、NUMO-SC で示されたケースのうち、緩衝材の最高温度が 100℃未満となる条件によって処分坑道中心間距離が設定されたケースを対象に、空洞の安定性が確保される条件まで処分坑道中心間距離を縮めた場合に、緩衝材内の最高温度や、100℃超領域等のニアフィールドの温度分布を把握した。

表 3.2-1　NUMO-SC における坑道中心間距離の設定結果

条件		縦置き・ブロック方式			横置き・PEM 方式		
		パネル型の処分区画		デッドエンド型の処分区画			
		深成岩類	新第三紀堆積岩類	先新第三紀堆積岩類	深成岩類	新第三紀堆積岩類	先新第三紀堆積岩類
空洞安定性	処分坑道のみ	10.0m	12.0m	10.0m	9.6m	12.0m	9.6m
	取付部考慮	-	-	16.0m	16.0m	21.6m	16.0m
廃棄体熱影響	貯蔵期間30年	18.0m	12.0m	18.0m	22.0m	21.6m	22.0m
	貯蔵期間50年	10.0m	12.0m	10.0m	11.0m	12.0m	11.0m

3.2.2. 実施内容

(1) 解析条件

NUMO-SC で示された横置き・PEM 方式、深成岩類および先新第三紀堆積岩類、貯蔵期間 30 年のガラス固化体の熱伝導解析の事例を対象に、処分坑道中心間距離を解析ケースとした熱伝導解析を実施した。図 3.2-1 に熱伝導解析に用いた解析条件、表 3.2-2 に解析に用いた物性値を示す。解析には COMSOL を用いた。

解析ケースとして、深成岩類および先新第三紀堆積岩類を対象に、NUMO-SC と同様に廃棄体定置間隔を 3.356m、4.356m、5.356m と設定した条件に対して、坑道中心間距離を様々に変化させた。廃棄体定置間隔を 3.356m と設定したケースでは、空洞の安定性を満足する最小の坑道中心間距離である 16m のほか、20m、25m、30m、35m に対して解析を行った。廃棄体定置間隔を 4.356m と設定したケースでは、坑道中心間距離が 16m、20m、25m、30m に対して解析を行った。廃棄体定置間隔を 5.356m と設定したケースでは、坑道中心間距離が 16m、20m、25m に対して解析を行った。以上の合計 24 ケースの解析を実施した。解析対象期間は 100 年とした。

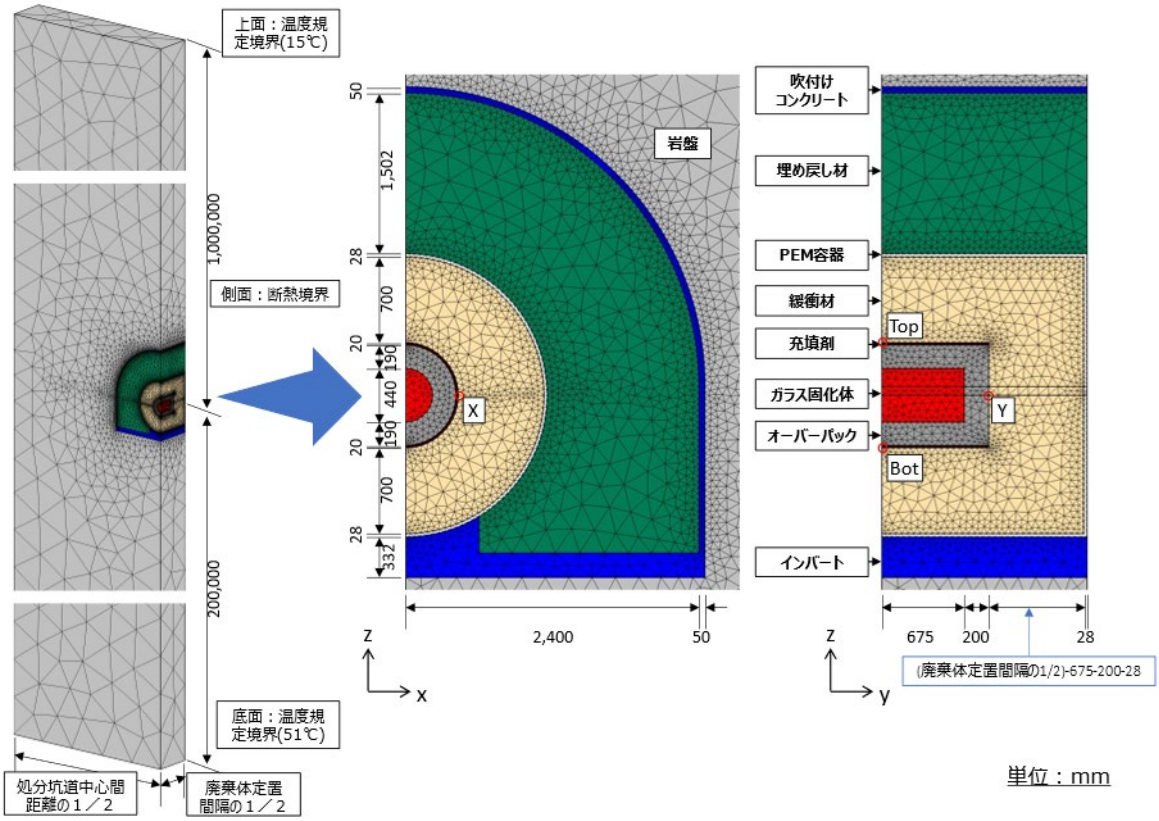


図 3.2-1　熱伝導解析に用いた解析条件

表 3.2-2　熱伝導解析に用いた解析用物性値

	熱伝導率	密度	定圧熱容量
	W/(m・K)	Kg/m^3	J/(Kg・K)
ガラス固化体	1.20	2880	960
オーバーパック	51.60	7860	470
緩衝材	1.14	1790	720
充填材	0.30	1200	140
PEM 容器	51.60	7860	470
埋め戻し材	1.36	1810	750
支保・インバート	2.56	2350	1050
深成岩類/先新第三紀堆積岩類	2.90/2.80	2690/2640	1000/1000

(2)　　解析結果

図 3.2-2 から図 3.2-4 に、深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側（図 3.2-1 中の Bot、Top、Y、X）の温度変化を示す。オーバーパック奥側に接している箇所（図 3.2-1 中の Y）が最も温度が高くなっている。最高温度が最も高くなったケース（坑道中心間距離：16m、廃棄体定置間隔：3.356m）では、約 11 年で緩衝材内の温度が最高温度（約 114℃）に到達し、50 年程度 100℃以上の期間が継続している。

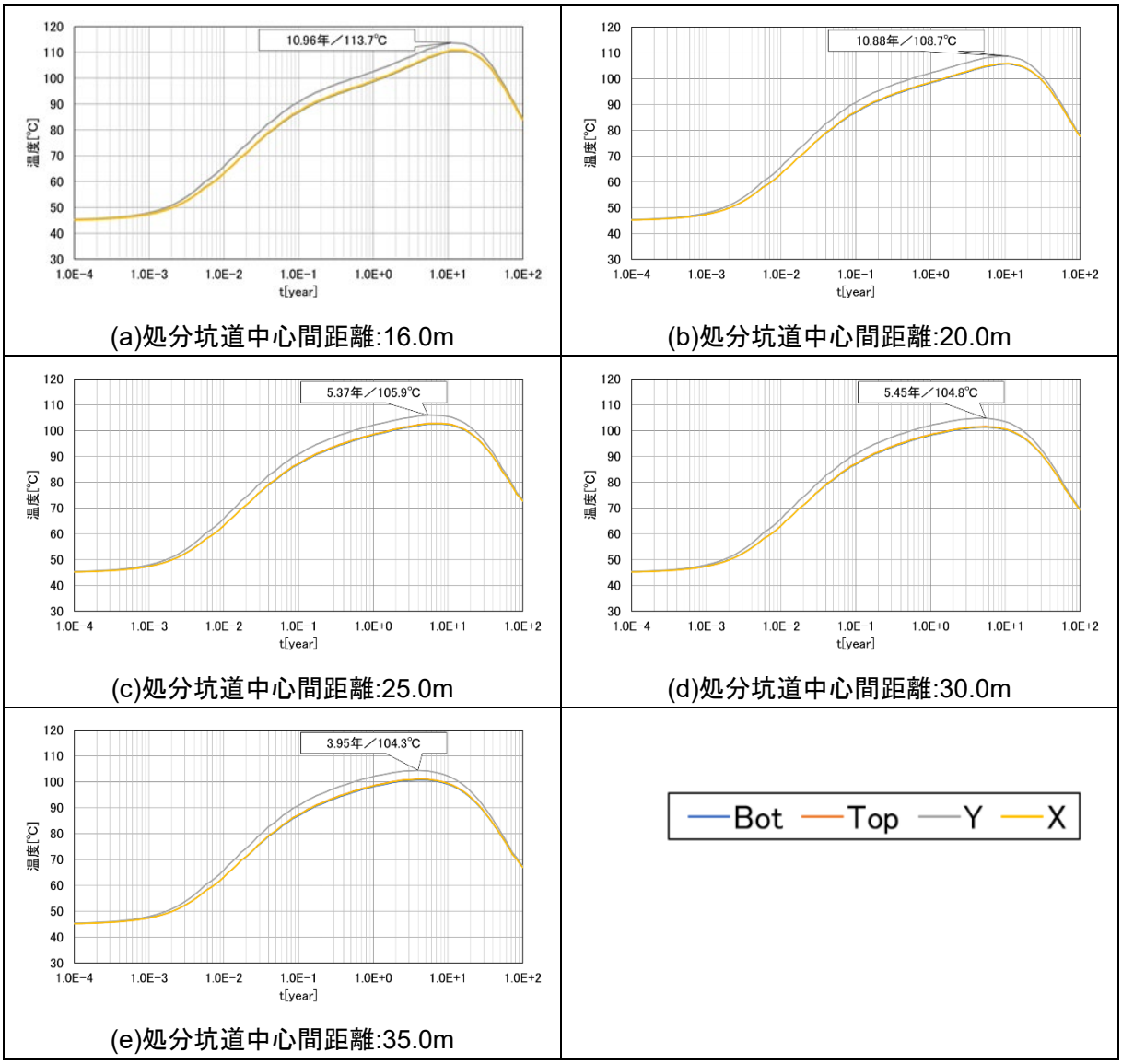
図 3.2-5 から図 3.2-7 に先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側（図 3.2-1 中の Bot、

Top、Y、X）の温度変化を示す。オーバーパック奥側に接している箇所（図 3.2-1 中の Y）が最も温度が高くなっている。最高温度が最も高くなったケース（坑道中心間距離：16m、廃棄体定置間隔：3.356m）では、約 11 年で緩衝材内の温度が最高温度（約 115℃）に到達し、50 年程度 100℃以上の期間が継続している。

図 3.2-8 から図 3.2-10 に深成岩類を対象とした場合の各ケースにおける緩衝材内側から x 方向に対する距離ごとの温度変化を、図 3.2-11 から図 3.2-13 に先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の各ケースにおける緩衝材内側からの x 方向に対する距離ごとの温度変化を示す。深成岩類および先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の、最高温度が最も高くなったケース（坑道中心間距離：16m、廃棄体定置間隔：3.356m）では、緩衝材内側から約 300mm 程度まで 100℃を超える領域が確認できる。

図 3.2-14 に、深成岩類を対象とした場合の緩衝材内の最高温度が最も高温となった時のニアフィールドの x 方向の温度分布を、図 3.2-15 に先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内の最高温度が最も高温となった時のニアフィールドの x 方向の温度分布を示す。本解析では、廃棄体定置間隔が 3.356m の場合、すべてのケースで緩衝材内の最高温度が 100℃より大きくなり、廃棄体定置間隔が 5.356m の場合、すべてのケースで緩衝材内の最高温度が 100℃より小さくなった。

NUMO-SC での緩衝材の設計検討では、横置き・PEM 方式の場合、緩衝材の必要厚さは 300mm 以上確保することが報告されている。本研究で実施した熱伝導解析では、いずれのケースでも、緩衝材の必要厚さの下限値である 300mm は 100℃以下の状態が保たれる結果となった。

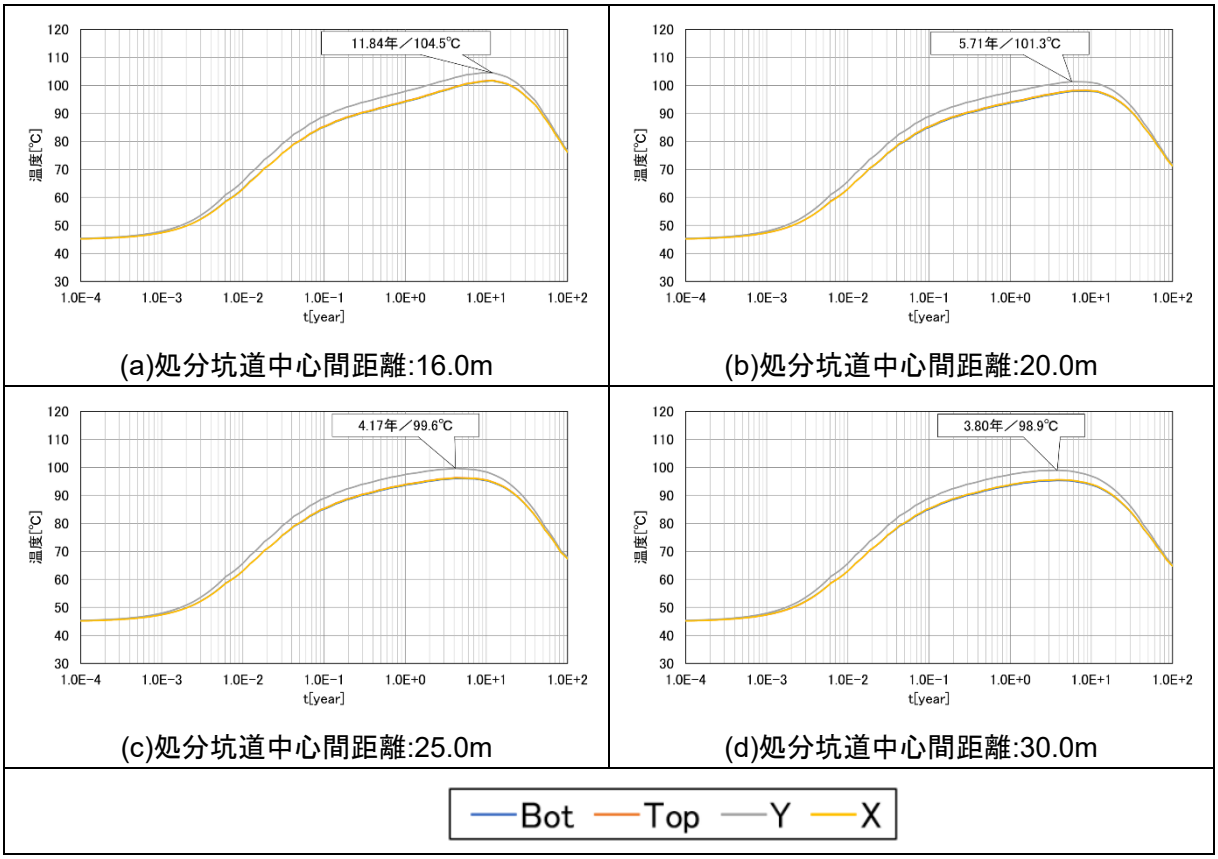


(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m　(d)処分坑道中心間距離:30.0m

(e)処分坑道中心間距離:35.0m

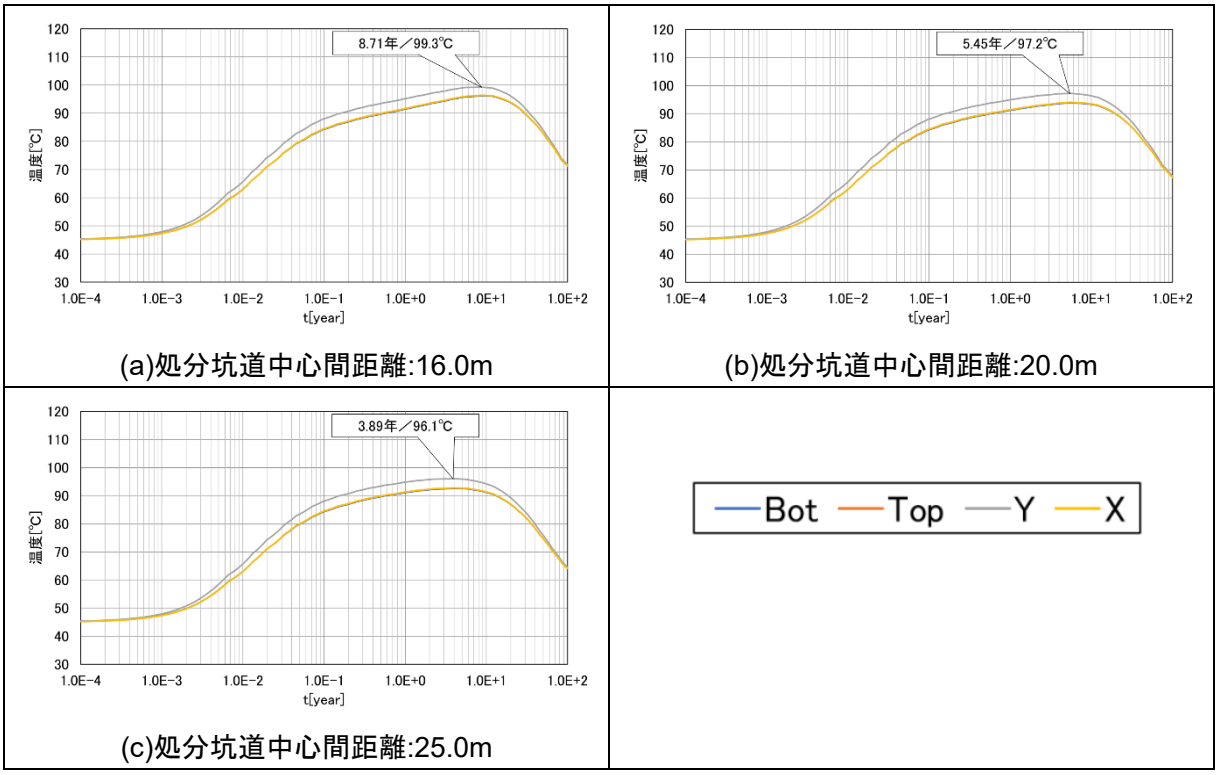
図 3.2-2　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m



(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m　(d)処分坑道中心間距離:30.0m

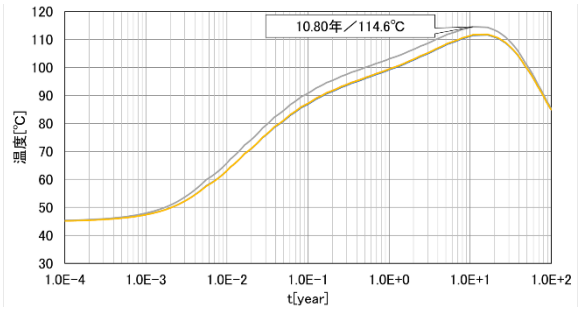
図 3.2-3　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m



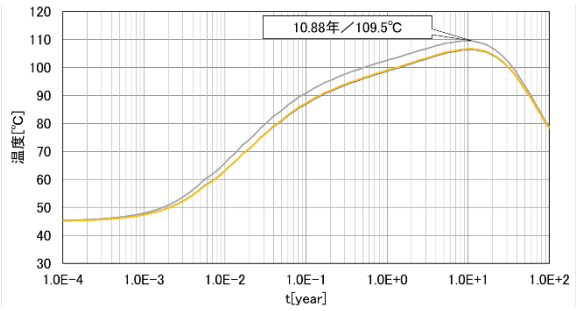
(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m

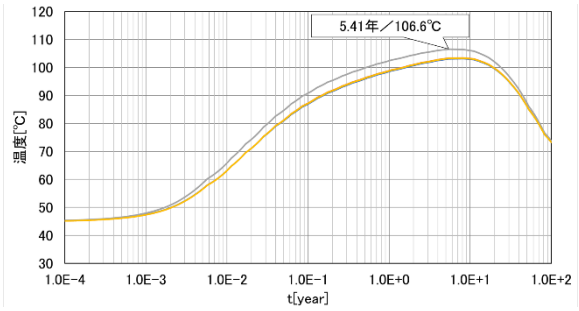
図 3.2-4　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m



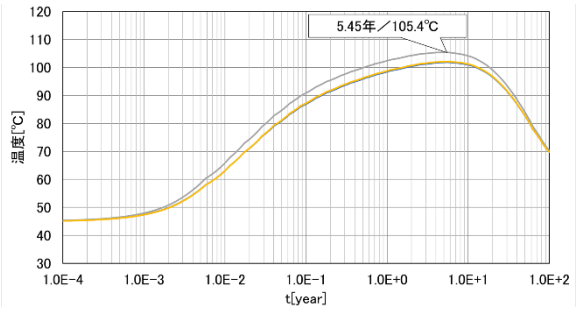
(a)処分坑道中心間距離:16.0m



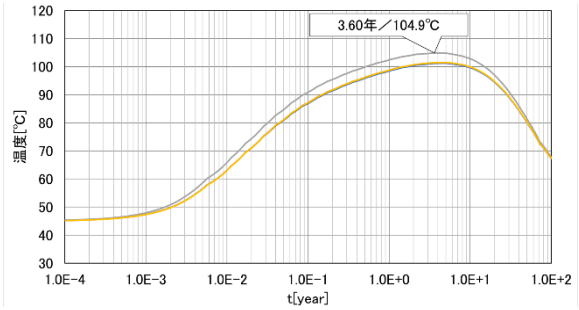
(b)処分坑道中心間距離:20.0m



(c)処分坑道中心間距離:25.0m

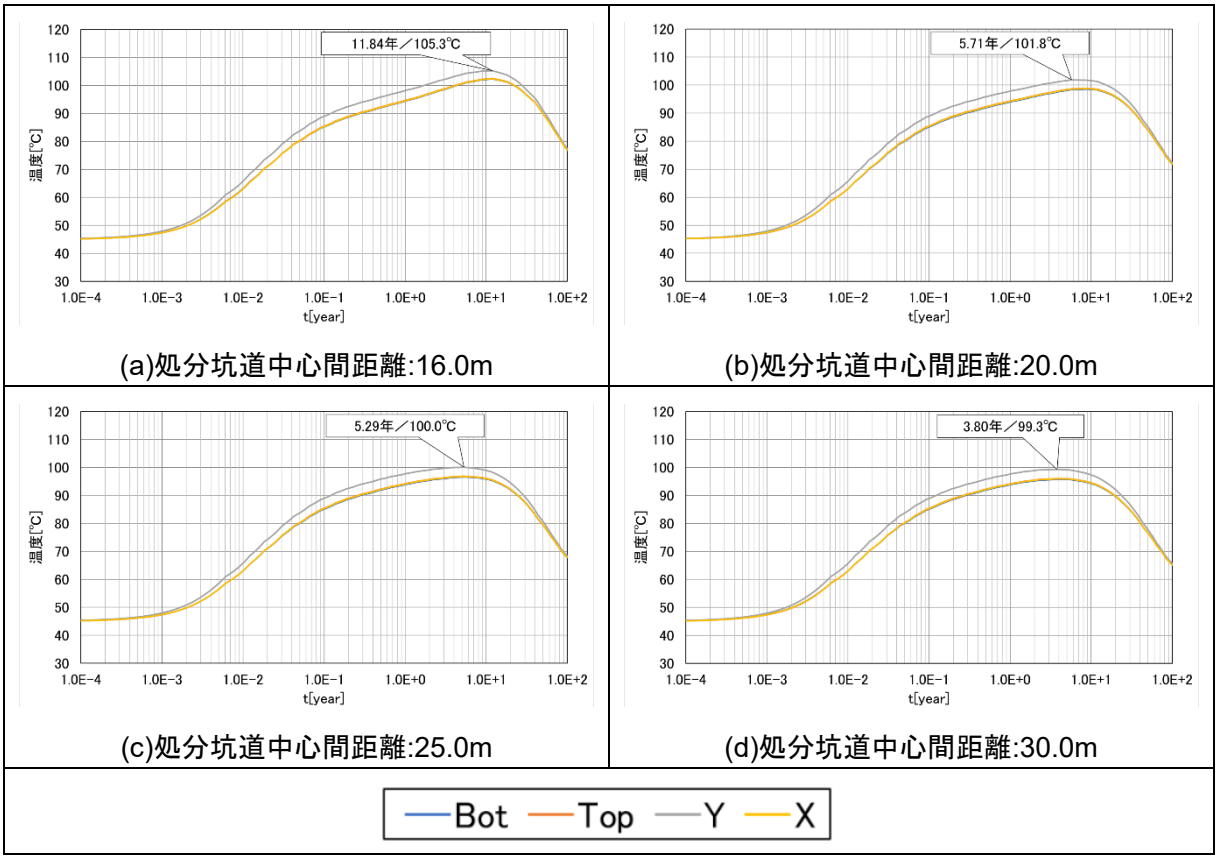


(d)処分坑道中心間距離:30.0m



(e)処分坑道中心間距離:35.0m

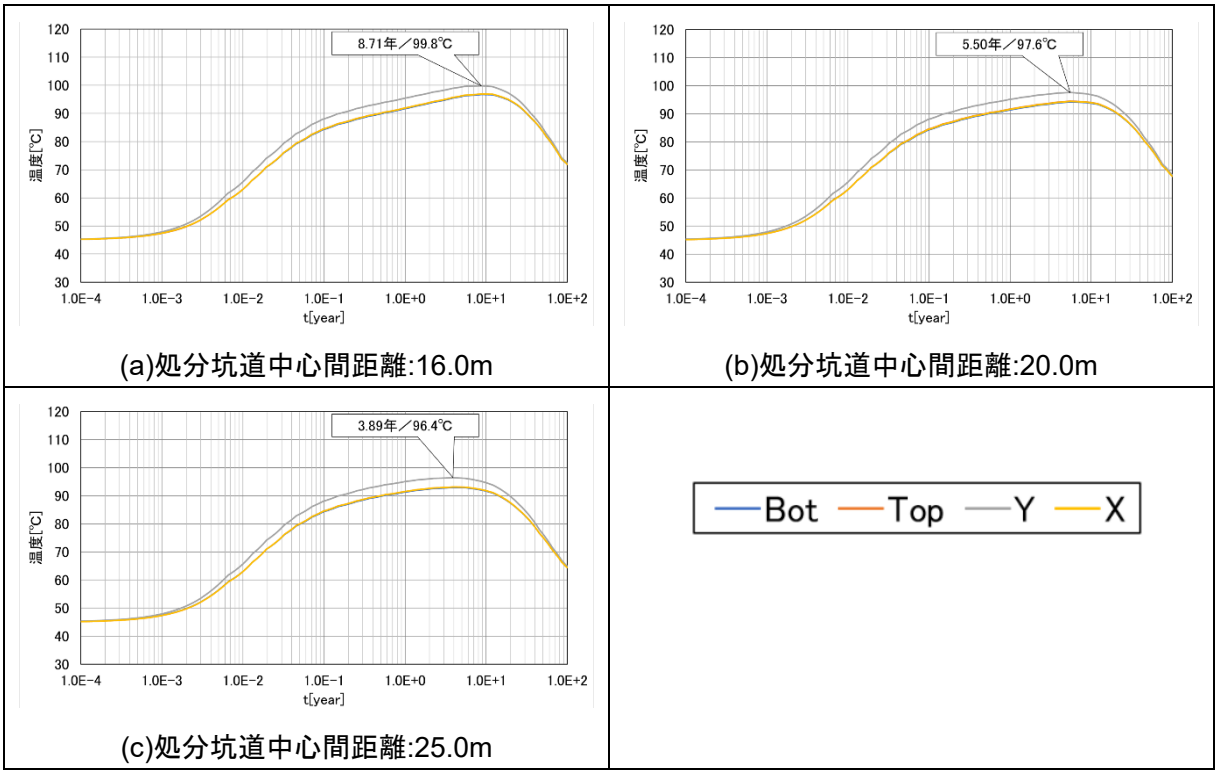
図 3.2-5　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m



(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m　(d)処分坑道中心間距離:30.0m

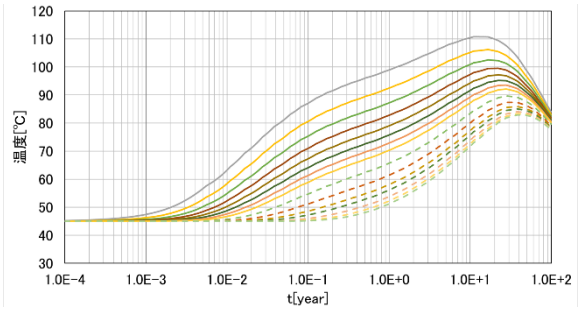
図 3.2-6　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m



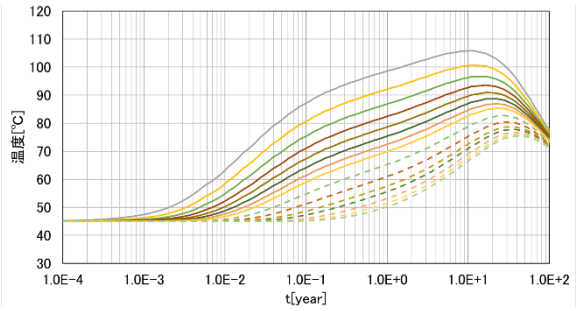
(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m

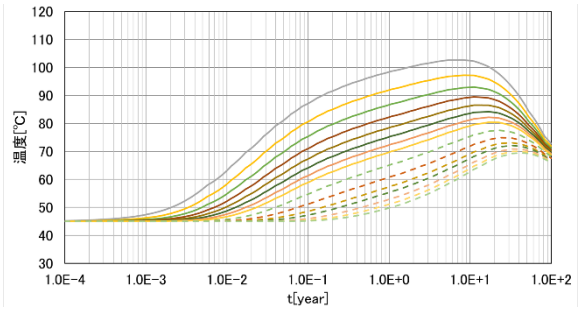
図 3.2-7　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側の温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m



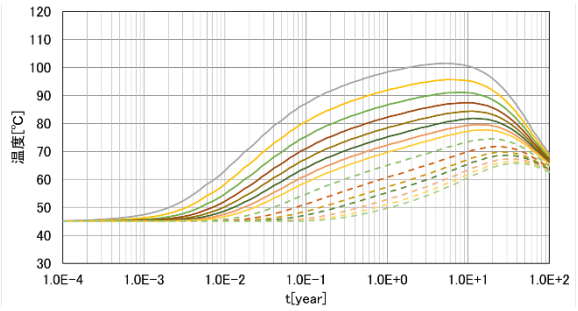
(a)処分坑道中心間距離:16.0m



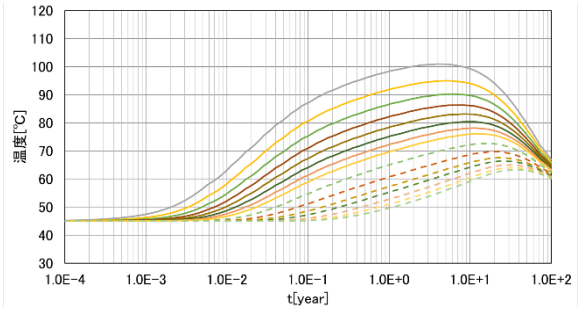
(b)処分坑道中心間距離:20.0m



(c)処分坑道中心間距離:25.0m



(d)処分坑道中心間距離:30.0m



(e)処分坑道中心間距離:35.0m

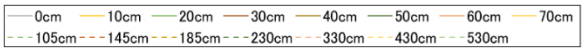
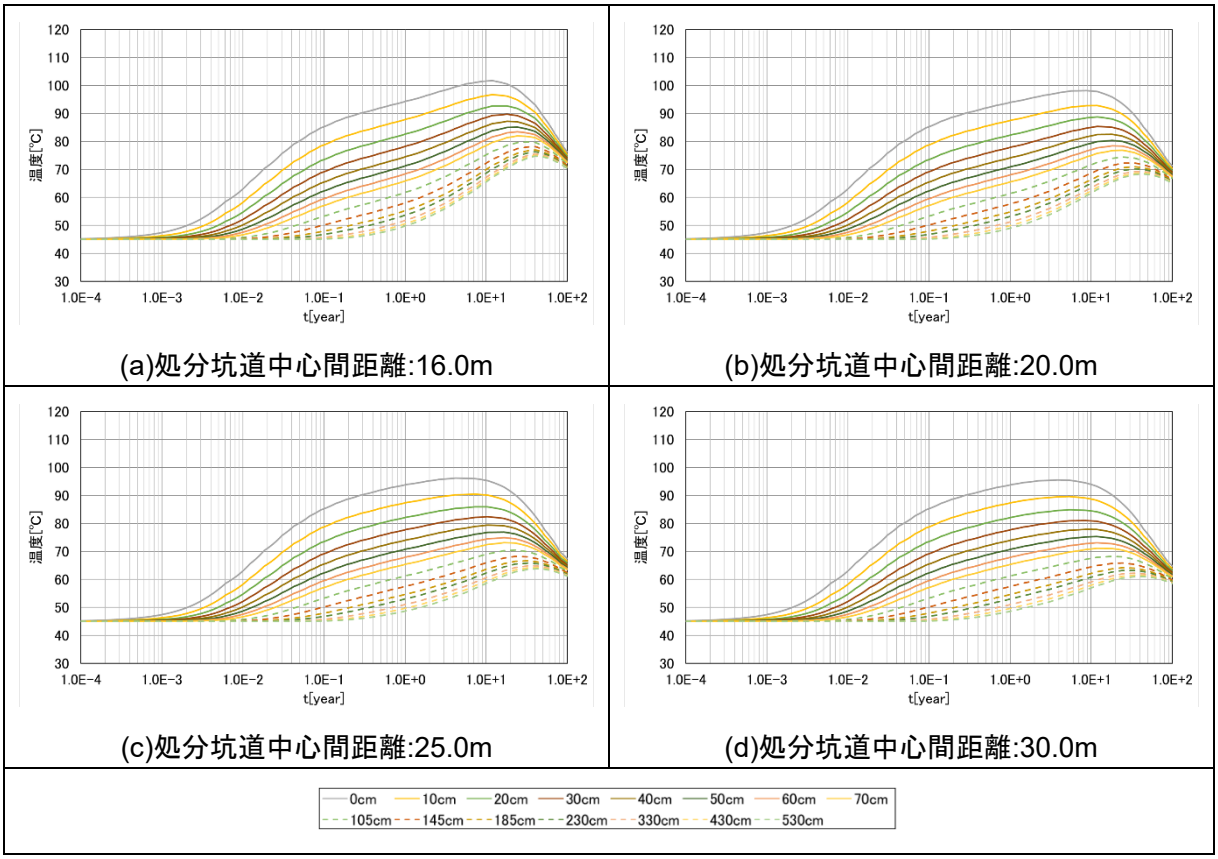


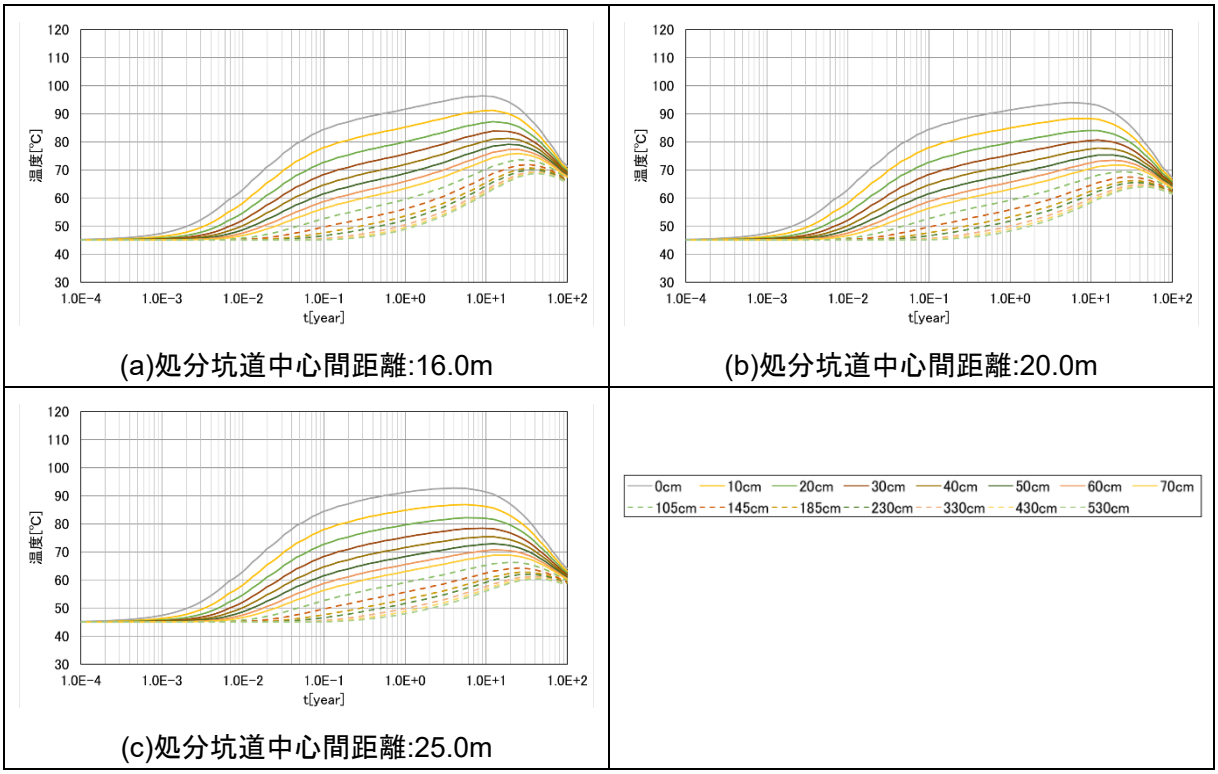
図 3.2-8　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m



(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m　(d)処分坑道中心間距離:30.0m

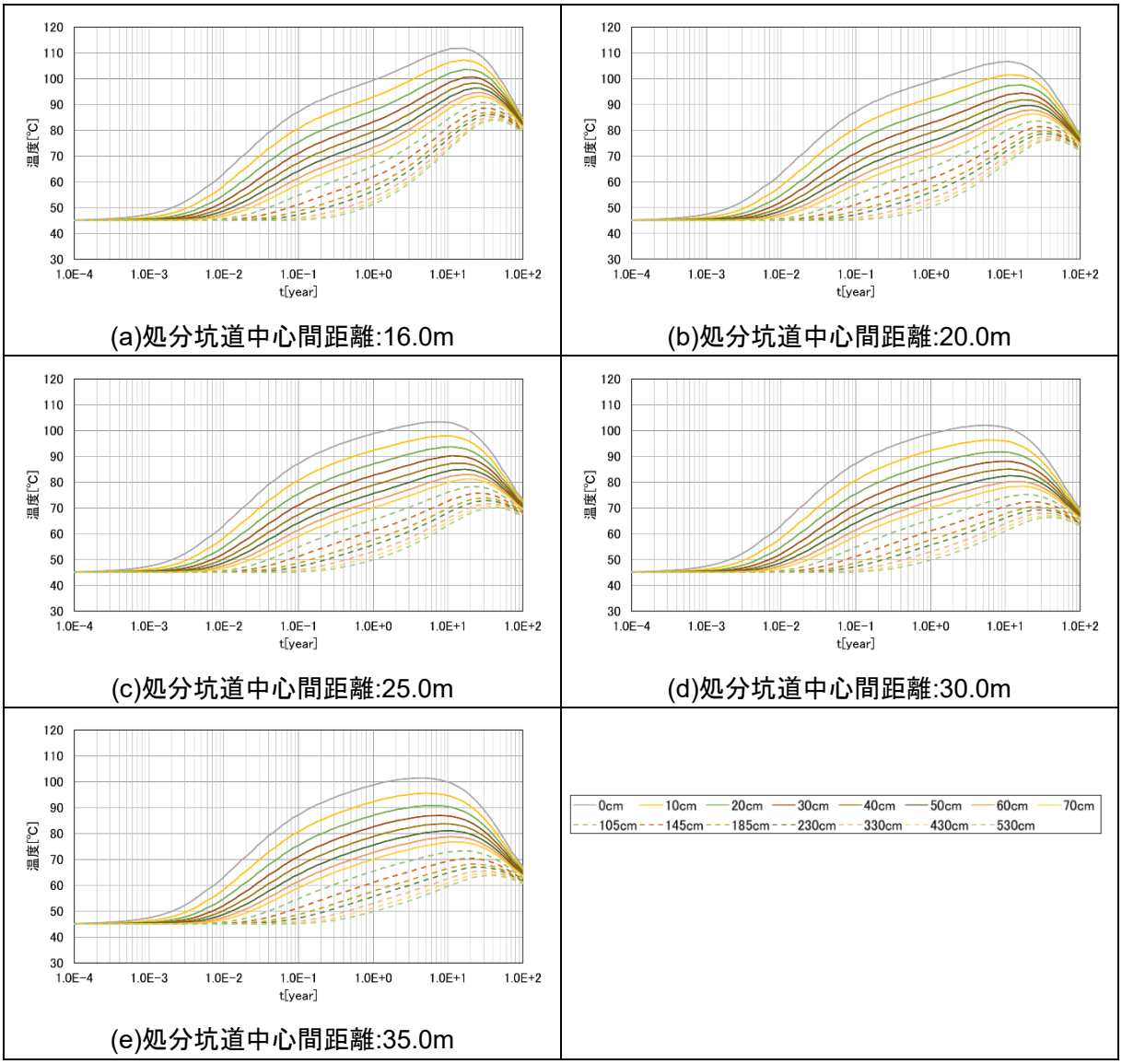
図 3.2-9　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m



(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m

図 3.2-10　深成岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m

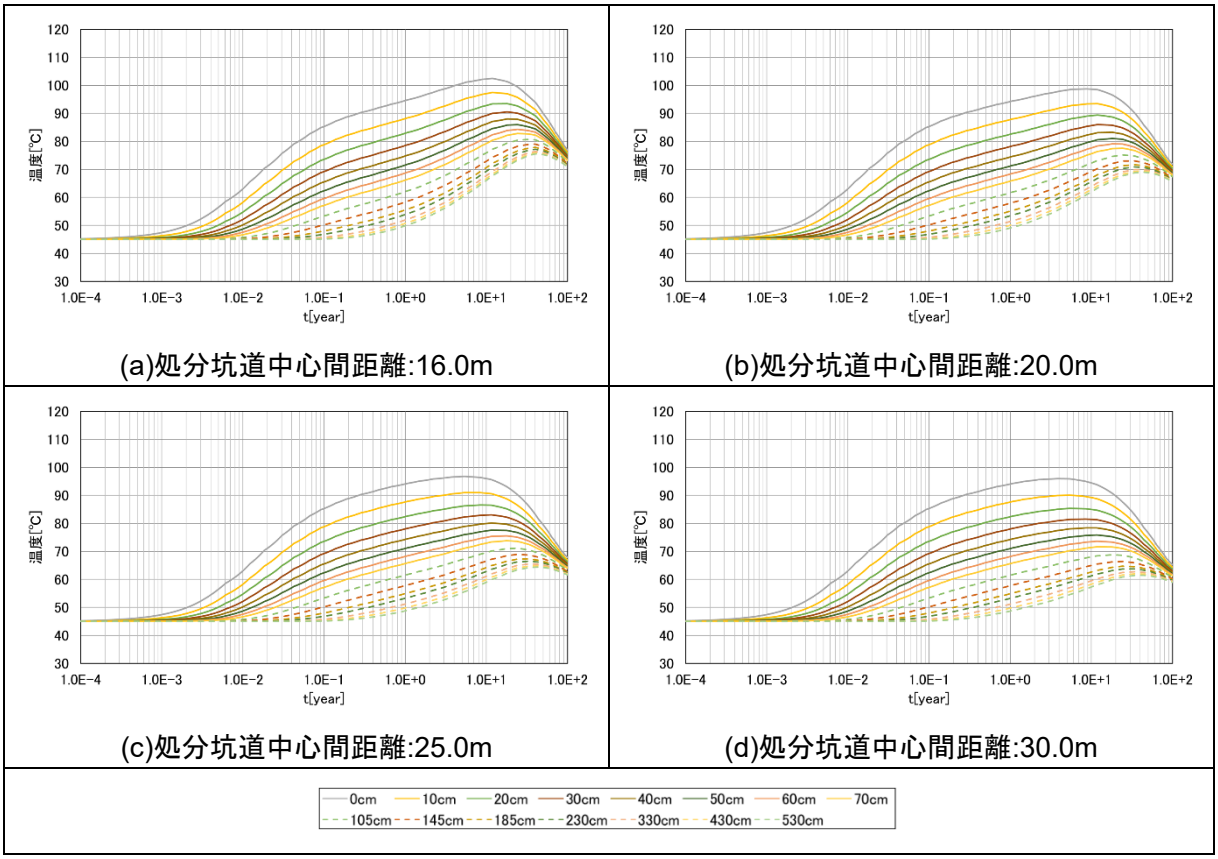


(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m　(d)処分坑道中心間距離:30.0m

(e)処分坑道中心間距離:35.0m

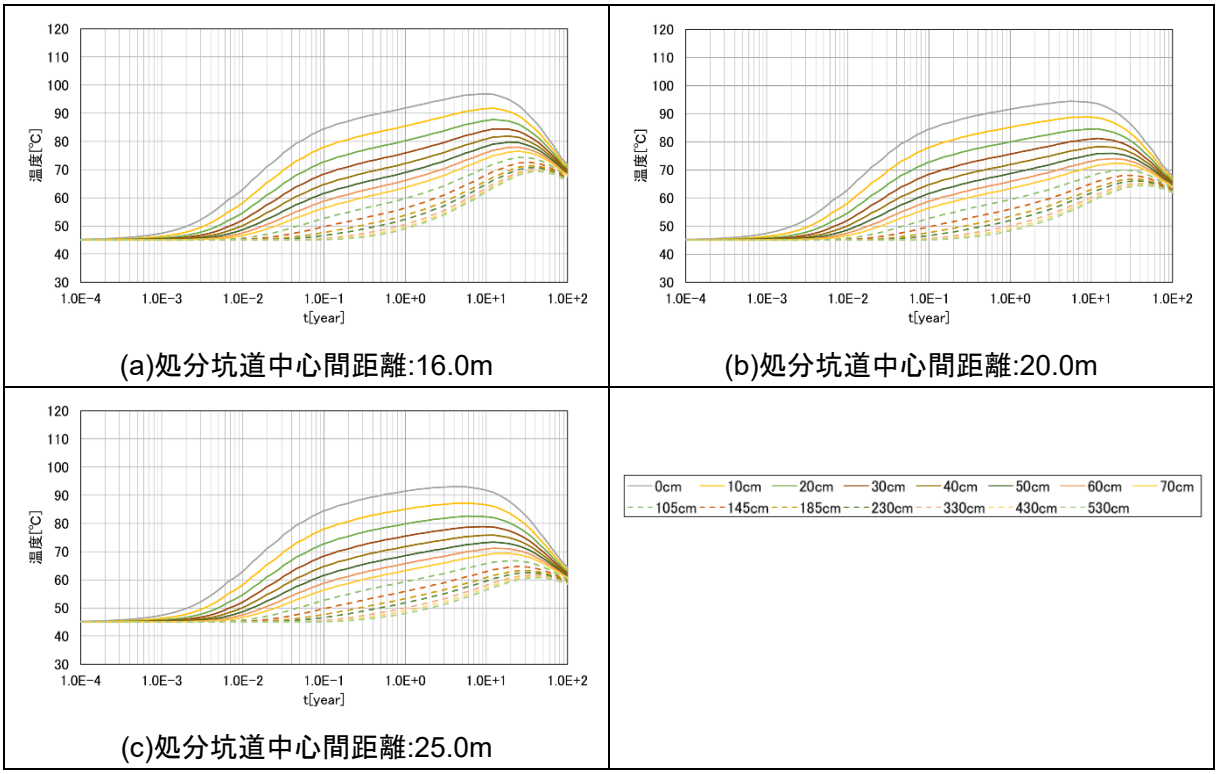
図 3.2-11　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:3.356m



(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m　(d)処分坑道中心間距離:30.0m

図 3.2-12　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:4.356m



(a)処分坑道中心間距離:16.0m　(b)処分坑道中心間距離:20.0m

(c)処分坑道中心間距離:25.0m

図 3.2-13　先新第三紀堆積岩類を対象とした場合の緩衝材内側からの距離ごとの温度変化 廃棄体定置間隔:5.356m

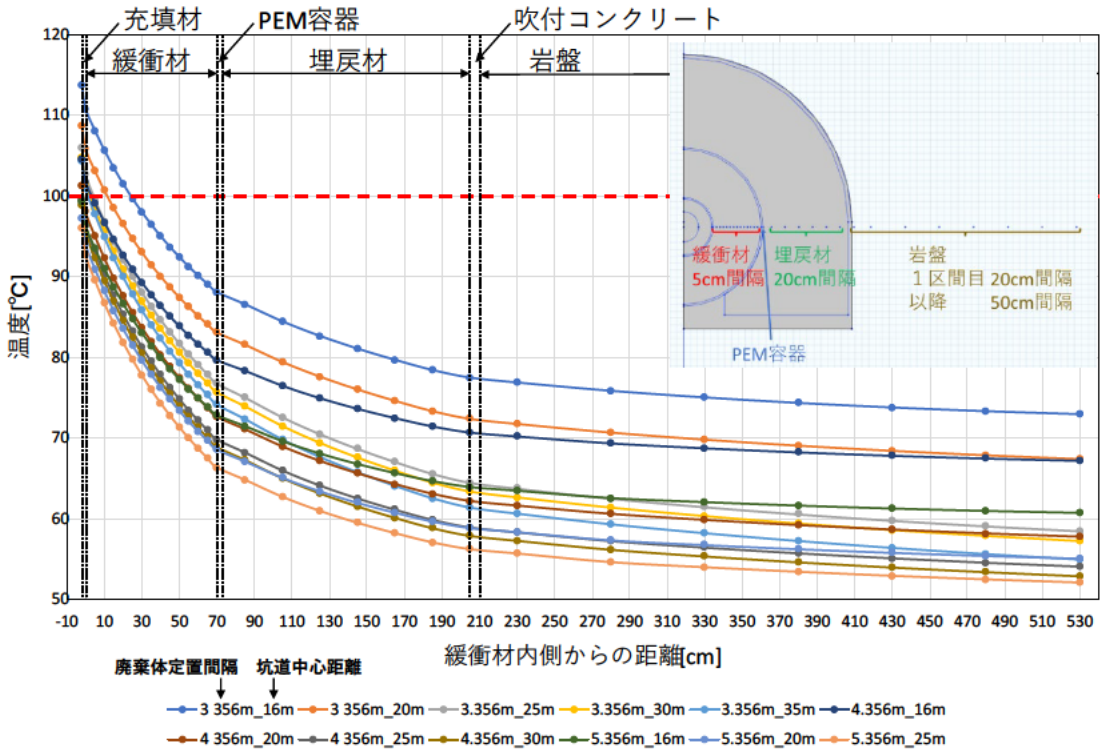


図 3.2-14　深成岩類の場合の緩衝材内の温度が最高温度に到達した時の温度分布

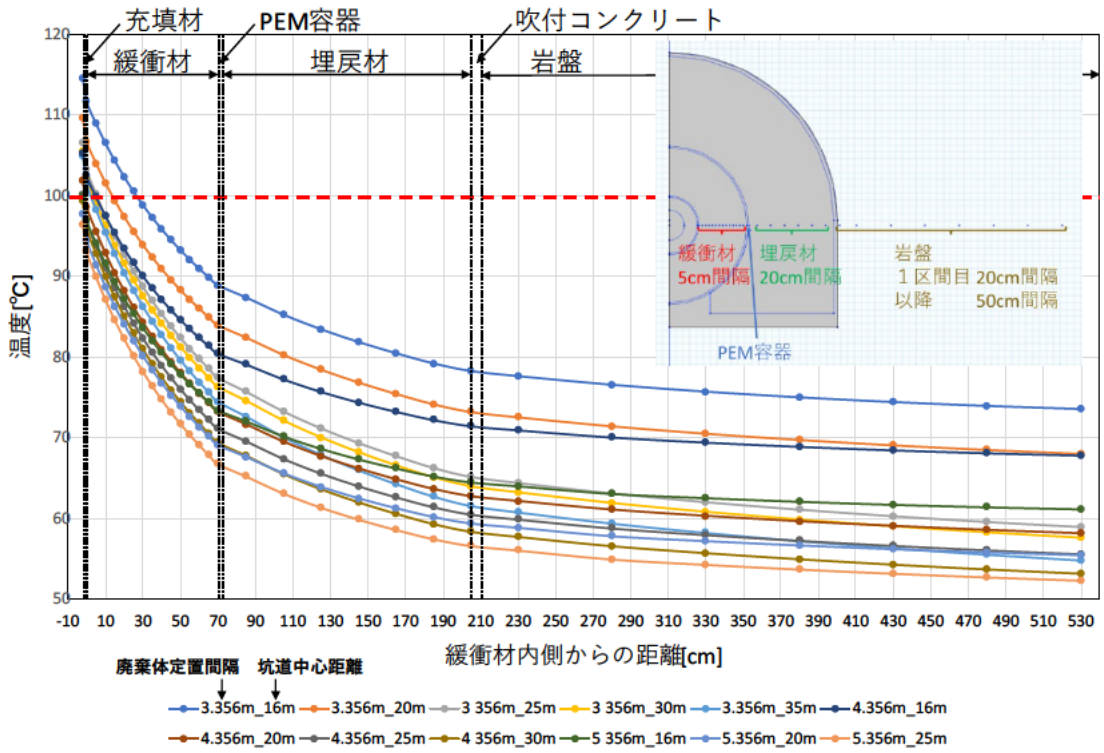


図 3.2-15　先新第三紀堆積岩類の場合の緩衝材内の温度が最高温度に到達した時の温度分布

3.2.3. 成果と今後の課題

本検討では、NUMO-SC で示されたケースのうち、緩衝材の最高温度が 100℃未満となる条件によって処分坑道中心間距離が設定された NUMO-SC で示された横置き・PEM 方式、深成岩類・先新第三紀堆積岩類、貯蔵期間 30 年のガラス固化体の熱伝導解析の事例を対象に、空洞の安定性が確保される条件まで処分坑道中心間距離を縮めた場合に、緩衝材内の最高温度や、100℃超領域等のニアフィールドの温度分布を把握した。

その結果、最高温度が最も高くなったケース（坑道中心間距離：16m、廃棄体定置間隔：3.356m）では、最高温度は約 114℃、100℃を超える領域は 250mm 程度であった。NUMO-SC での緩衝材の設計検討では、横置き・PEM 方式の場合、緩衝材の必要厚さは 300mm 以上確保することが報告されている。本研究で実施した熱伝導解析では、いずれのケースでも、緩衝材の必要厚さの下限値である 300mm は 100℃以下の状態が保たれる結果となった。

今後は、NUMO-SC で示されたケースのうち、縦置き・ブロック方式、深成岩類および先新第三紀堆積岩類、貯蔵期間 30 年のガラス固化体の熱伝導解析の事例を対象に、同様の解析を実施していく予定である。

3.3. 幌延地下施設での 100℃超条件における原位置試験

3.3.1 背景と目的

温度 100℃を超える状況を想定した場合の人工バリアに生じる現象や人工バリアの機能への影響を把握し、シナリオ構築に資するためには、個別の現象やその詳細なメカニズムを理解するための室内試験に加え、実際の深部地下環境において 100℃を超える温度条件で生じる複合的な現象を理解するための原位置試験が重要となる。諸外国では、こうした現象理解ならびにモデルの構築を目的とした高温度条件下での原位置試験が展開されており、たとえばスウェーデンの Äspo で実施された、緩衝材中の最高温度をそれぞれ約 140℃、約 170℃まで上昇させた Long-term Test of Buffer Material（LOT）（Karnland et al., 2000；2009；2011）や Temperature Buffer Test（TBT）（Åkesson, 2012）、スイスの Mont Terri で実施された、ヒーターの表面温度をそれぞれ 130～150℃、140℃まで上昇させた Full-scale Emplacement（FE）（Müller et al., 2017）や HE-E（Gaus et al., 2014）などがこれに該当する。また、スイスの Grimsel では、ヒーター表面の最高温度 200℃で最大 20 年程度加熱することを計画した High Temperature Effects on Bentonite Buffers（HotBENT）が 2019 年に開始され、2022 年より設置されたヒーターの加熱が開始されている（Kober et al., 2023）。これに対して、わが国において 100℃を超える温度での加熱が行われた原位置試験は、深度 50 m の地下空洞内で周辺岩盤に生じる力学的な変化のみを検証した事例（高倉ほか, 2011）に限られ、実際の処分深度で実施された試験のヒーター表面温度は最高でも約 100℃に留まる（茂呂ほか, 1997；Chijimatsu et al., 2000）。

緩衝材に 100℃以上の熱履歴が与えられた場合、緩衝材のクラック（炭山, 1999；Pusch, 2000；Wersin et al., 2021）や水の沸騰に起因すると考えられる破損（Kaufhold et al., 2017）、膨潤圧の低下や透水係数の上昇（たとえば、Couture, 1985；Pusch et al., 2003；Wersin et al., 2007；日本原子力研究開発機構, 2009；Valter and Plötze, 2013）などが生じる可能性が、室内ならびに原位置試験の結果から示唆される。化学的な変化についても、可溶性成分（硫酸塩、炭酸塩など）の溶解と緩衝材中での再分配、ヒーター接触部近傍での Mg 濃度の上昇、腐食生成物に起因する Fe 濃度の上昇、スメクタイトのイオン型変化ならびに陽イオン交換容量の減少などは、複数の原位置試験で共通的に生じる現象として抽出される（Karnland et al., 2009；Åkesson, 2012；Dohrmann et al., 2013；Kaufhold et al., 2013；2017；2021；Svensson and Hansen, 2013；Wersin et al., 2015；2021；Dohrmann and Kaufhold, 2017）。一方、諸外国での原位置試験では加熱後速やかに試験系を解体しているため、100℃を超えた熱履歴を経た緩衝材がその後の再冠水等の過程において原位置環境下で期待される性能を発揮するかの理解は、十分には進んでいない。

本タスクでは、実際の地下環境で温度が 100℃超となった場合に生じる現象を把握するために、幌延深地層研究センターの地下施設を活用した技術開発を行う。具体的には、同地下施設において工学的規模の原位置試験を実施し、100℃超の温度条件で加熱した際の緩衝材に生じる現象や、100℃超の温度履歴を経た緩衝材・岩石への再冠水挙動等の観測を行う。令和 5 年度は、地下施設の既存の試験孔を活用した原位置試験の計画を具体化するとともに、緩衝材、ヒーター、計測センサー等の試験資材を準備し、それらを 2 つの試験孔に設置して試験を開始した。

3.3.2 実施内容

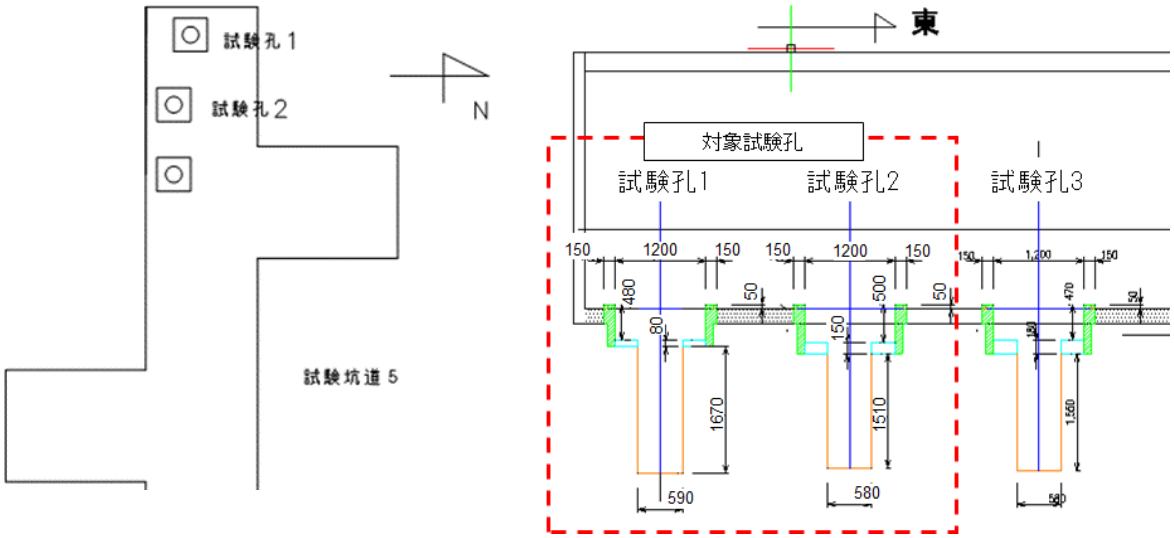
(1) 試験概要

全体的な試験計画は次の通りである。幌延深地層研究センターの地下施設内に、緩衝材ブロック、ヒーター、計測センサーからなる試験体を 2 つ設置し、100℃を超えるヒーター温度で加熱する。両者を同一の期間加熱したのち加熱を停止し、片方の試験体は先に解体して、100℃を超え

る熱履歴を経た緩衝材の特性変化等に関する試験・分析を実施する。もう片方の試験体はその後も 100℃未満の温度で継続して定置し、100℃を超える熱履歴を経た緩衝材に対する地下水の浸潤挙動等を確認したのちに解体して、先の試験体と同様に試験・分析を実施する。令和 5 年度は、上記の計画のうち試験体の設置と加熱開始までを実施した。

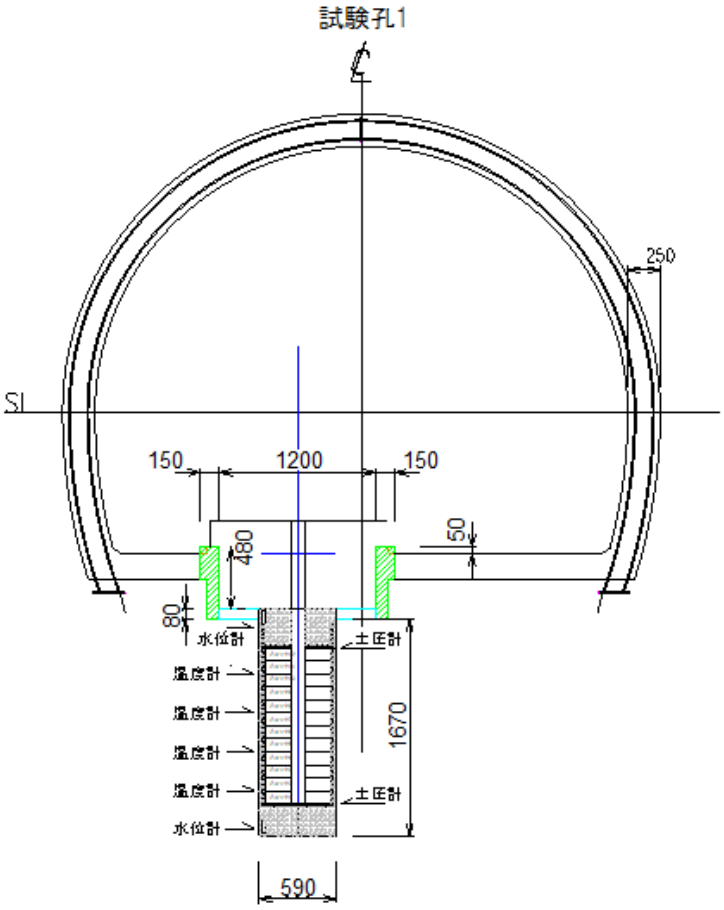
試験体の設置場所として、地下施設の 350m 坑道・試験坑道 5 に掘削されている既存孔を選択した。設置場所の断面図を図 3.3-1 に示す。同試験坑道内には既存の試験孔が 3 孔掘削されており、過去にオーバーパックの溶接部腐食や緩衝材の流出現象等に関する原位置試験が複数実施されている（原子力環境整備促進・資金管理センター, 2018；日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023）。これらの試験で取得された湧水量や地下水水質等のデータが本試験においても参考になりうること、試験孔が隣接しているため地下水水質等の条件が比較的類似した状態で試験を実施できると考えられることから、これらの既存孔を試験場所として選択した。本試験では、試験坑道 5 の妻面（奥側）に近いほうから 2 孔（それぞれ、試験孔 1、試験孔 2）を使用し、試験孔 2 の試験体を先に解体・分析することとした。なお、試験孔 1 は裸孔、試験孔 2 は孔壁にモルタルが塗布されており、孔内の壁面状態は 2 孔で異なる。

試験体の概略図を図 3.3-2 に示す。緩衝材ブロック、ヒーター、計測センサーを一体化して治具により固定して試験体とした。治具を使用したのは、緩衝材ブロックの鉛直方向の膨潤による試験体の浮き上がりを抑制するため、ならびに解体調査時の試験体の取り出しを容易にするためであり、緩衝材ブロックを蓋状の構造物で上下から挟んでボルトで固定する設計とした。緩衝材ブロックは、クラックの発生への寄与が大きいと予想される初期水分量（3.4 章参照）、およびクラックの発生やその後の地下水浸潤挙動への寄与が大きいと予想される形状の 2 条件をパラメータとして、2 条件×2 通りの計 4 条件で作製した。試験体のスケールが比較的小さいことから、設置する計測センサーは試験に大きな影響を及ぼさないと考えられる程度の種類および数量とした。治具により固定して組み立てた試験体を孔内に設置した後に、試験体と試験孔壁面の間を珪砂で充填することとした。これは、試験孔壁の岩盤の亀裂を通じて試験孔内に供給される地下水（自然湧水）を緩衝材ブロックに可能な限り均等に浸潤させることを目的としており、海外における高温度条件での原位置試験でも同様の手法が採用されている（Karnland et al., 2009；Åkesson, 2012）。

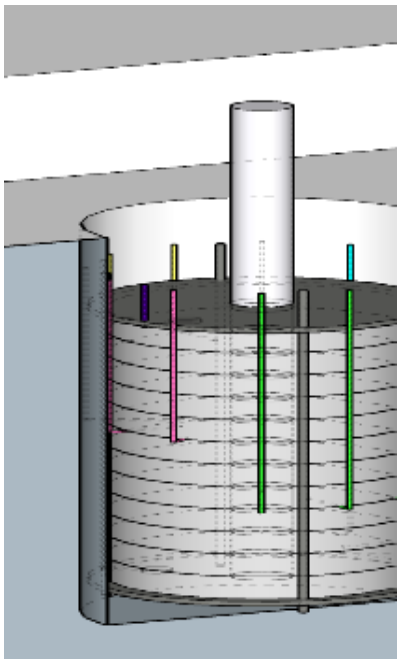


(a) 平面図　　(b) 断面図

図 3.3-1　試験実施場所



(a) 断面図



(b) 三次元イメージ

図 3.3-2　試験系の全体図（試験孔 1 設置時）

(2) 試験資材等の準備

1) 緩衝材ブロック

緩衝材ブロックは、Na 型ベントナイトであるクニゲル V1（クニミネ工業株式会社製）と珪砂（3 号と 5 号を 1:1 で混合したもの）を珪砂混合率が 30wt.%となるように混合し、外径 500 mm、内径 110 mm のドーナツ型となるように作製した。使用した珪砂の粒径加積曲線を図 3.3-3 に示す。ブロックのサイズは試験孔の直径（580～590 mm；図 3.3-1）および内側に設置するヒーター径（直径 100 mm）を考慮したものであり、試験孔寸法をふまえ、成型時の目標乾燥密度が約 1.8 Mg/m^3（膨潤時の密度約 1.6 Mg/m^3）となるように作製した。また、孔の深さと緩衝材ブロックの作製条件数を考慮し、1 つのブロックの厚さは 10 cm、各試験孔での積み上げ段数 12 段とした。

(1) で述べたように、緩衝材ブロックは初期水分量（2 条件）と形状（2 条件）をパラメータとし、計 4 条件で作製した。締固められた緩衝材ブロックに対して熱履歴が与えられると、供試体の乾燥収縮やそれによるクラックが生じると考えられ（炭山, 1999；Pusch, 2000；Wersin et al., 2021；3.4 章）、乾燥収縮の程度に関係しうる初期水分量は、緩衝材のクラック発生挙動において重要なパラメータと予測される。初期水分量が誤差（一般的な土質材料の基準として±2%）を考慮して有意に異なる 2 条件で成型可能であることに加え、目標乾燥密度である 1.80 Mg/m^3 を達成すること、緩衝材ブロックの圧縮成型が現実的に可能な成型圧力となることが、初期水分量値の設定に関する制約条件となる。本試験では、珪砂混合率 30 wt.%のクニゲル V1 を対象に取得された締固め曲線（増田ほか, 2004）をふまえ、成型圧力を 11～15 MPa、初期水分量の設定値を 10.5%および 15%の 2 条件とした。また、緩衝材ブロックの形状は緩衝材に対する応力や地下水浸潤挙動に影響するパラメータとなりうると考えられる。そのため本試験では、ドーナツ型の緩衝材ブロックと、それを 2 等分した扇形の緩衝材ブロックの 2 種類を用いた。なお、ブロックはすべてドーナツ型として成型し、設置前に 2 等分に切断することで扇形とした。各試験孔の緩衝材ブロックの積み上げ段数が 12 段であるため、4 条件（初期水分量 10.5%・ドーナツ型、初期水分量 10.5%・扇形、初期水分量 15%・ドーナツ型、初期水分量 15%・扇形）それぞれで 3 段ずつとなるように緩衝材ブロックを作製した。

緩衝材ブロックは、材料を金型内で混合し、1,400 t 級の油圧プレス機で厚さ方向に圧縮することにより作製した。成型されたブロックの寸法と重量を測定し、あらかじめ定めた基準値と大きく乖離していないことを確認した。乾燥などによる変質を排除するため、設置時までラップにより養生して保管した。緩衝材ブロックの製作工程図を図 3.3-4 に、各工程での写真を図 3.3-5 に、製作に関する管理基準値を表 3.3-1 に示す。

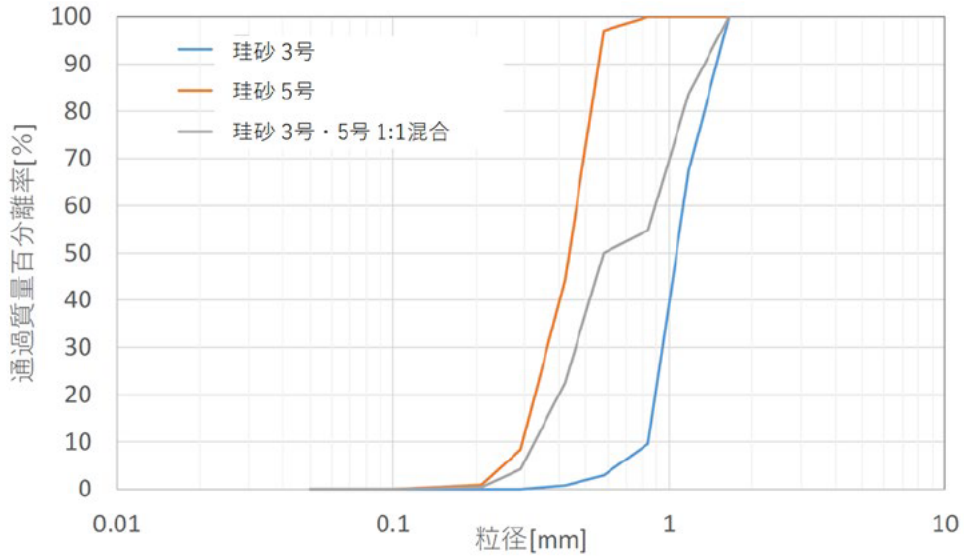


図 3.3-3　珪砂の粒径加積曲線

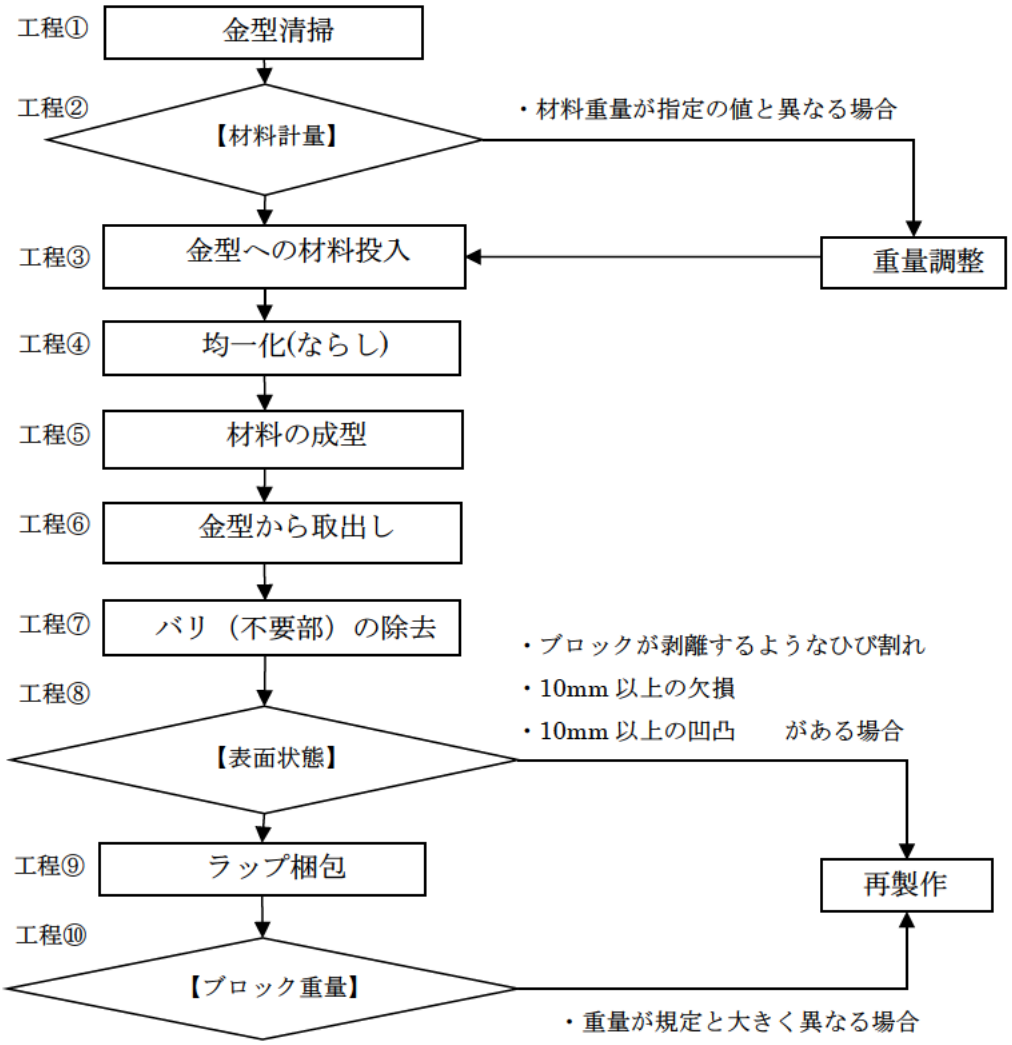


図 3.3-4　緩衝材ブロックの製作工程図

(a) 金型内に投入した材料の均一化

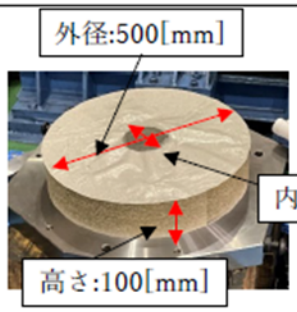
(b) 圧縮成型に用いたプレス機

(c) 材料の圧縮成型

(d) 金型から取り出したブロックの寸法計測

図 3.3-5　緩衝材ブロック製作時の写真

表 3.3-1　緩衝材ブロックの製作に関する各種設定値および管理基準値

項目	内容	設定値	管理基準値
材料 投入量	圧縮成型機の金型への材料投入量を電子秤にて測定	設計投入量：材料ごとの含水比に対して、成型後乾燥密度が 1.82[Mg/m^3]となるように投入量を調整	設計投入量±1%
圧縮高さ	成型機のピストン高さを目視確認	高さ 100mm	設定値
圧縮保持時間	圧縮保持時間をストップウォッチ等にて測定	実績より 20[min]	設定値
ブロック寸法	圧縮成型機から脱型したブロックの寸法（高さ：4 箇所、外径：2 箇所、内径 2 箇所）をノギスにて測定		設計値±2mm
ブロック外観	圧縮成型機から脱型したブロックの外観を写真撮影　正面、右側面、背面、左側面、上面、底面の 6 面を撮影	—	—
脱型後乾燥密度	圧縮成型機から脱型したブロックの質量を電子秤にて測定し乾燥密度を算出	目標燥密度: 1.80 [Mg/m^3]	目標値−0.1[Mg/m^3]以上

2)　ヒーターおよび緩衝材定置治具

ヒーターおよび緩衝材定置治具を一体とした装置の設計概念図を図 3.3-6 に示す。ヒーターは、炭素鋼（S45C）製の円筒（本体チューブ）の中にカートリッジヒーターと温度管理用の熱電対を設置する設計とした。本体内部に挿入するヒーターの加熱部分は全長 115 cm とし、上・中・下 3 箇所で異なる温度で加熱できる構造とした。加熱部分の設置位置は緩衝材ブロックの積み上げ部分と同じ高さになるようにし、炭素鋼製の本体チューブを通じて緩衝材ブロックの積み上げ高さ 120 cm 分を加熱できる構造とした。このような構造としたのは、本試験では加熱期間が短いことからヒーターに不具合が生じた場合すぐに交換し試験が継続できるようにするためである。

緩衝材ブロックの鉛直方向の膨潤による試験体の浮き上がりを抑制するために、本体チューブの底盤と中間に設置した蓋状の構造物で緩衝材ブロックを上下から挟んでねじボルトで固定する設計とした。本体チューブと上蓋の接続部分は、隙間からの地下水の浸潤を抑制するため、図 3.3-7 に示すように、自己融着性テープ No.66（厚さ 0.5 mm、日東シンコー株式会社製）、耐熱性シリコーン系シーリング材 8060 プロ（セメダイン株式会社製）および水膨張弾性シール材ポリシーラーUK（スリーボンドユニコム株式会社製）で止水対策を施した。下蓋との接続部分はボルト 4 孔で固定する形とし、固定部分には上蓋と同様の耐熱性シリコーン系シーリング材で止水対策を施した。また、本体チューブ、緩衝材定置治具およびねじボルトのうち緩衝材と接触しない部分には、電気絶縁塗料ワニスユニコート F128（明電ケミカル株式会社製）を塗布した。

ヒーターは単相 AC200 V、4000 W、±1℃で制御可能な仕様とした。本試験では、加熱時のヒーター最高温度を 140℃とした。この温度は、幌延の地下水水質をふまえたスメクタイトのイライト化に関する熱力学的解析（中山, 2022）やオーバーパックの耐食性への影響に関する室内試験データ（日本原子力研究開発機構, 2013）にもとづき決定した。また、加熱時には、ヒーター内に設置した熱電対を通じて取得された温度をもとに PTD 動作（比例動作、積分動作、微分動作を組み合わせる方法）によりヒーターの出力を制御し、加熱温度を調整する仕様とした。

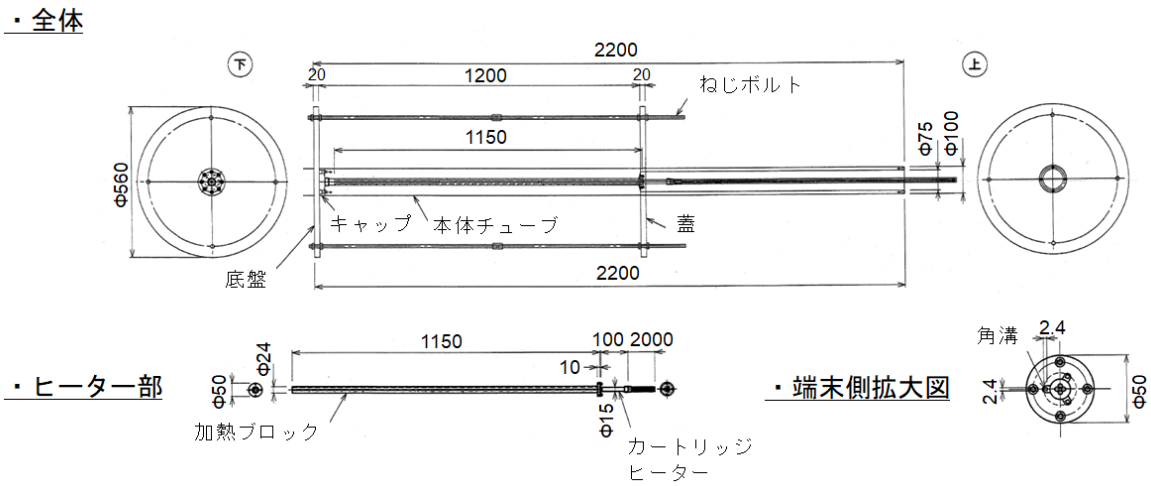


図 3.3-6　ヒーターおよび緩衝材定置治具の概念設計図

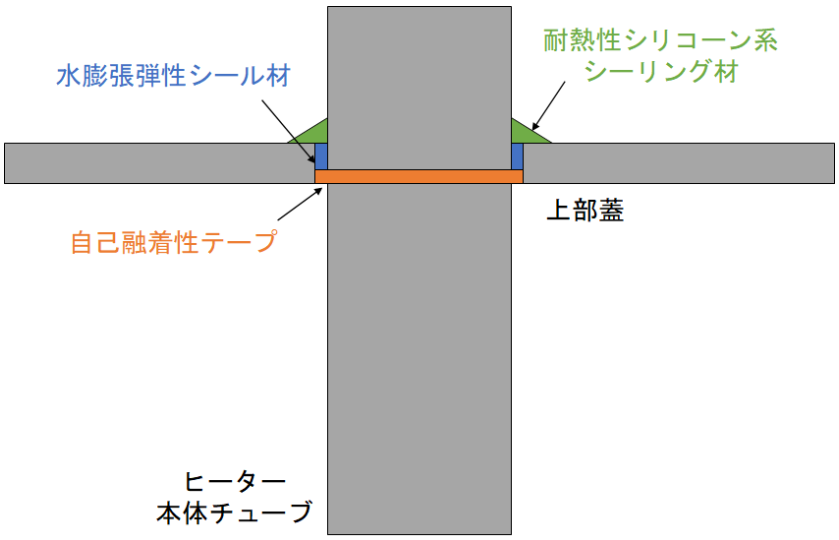


図 3.3-7　ヒーターと上蓋との接続部分における止水方法の概略図

3)　計測機器

試験孔 2 孔の緩衝材ブロック内部および側面に設置した計測機器の一覧を表 3.3-2 に示す。試験孔 2 には、温度の計測センサー（測温抵抗体）を緩衝材ブロックの 4 つの断面上に計 12 個、間隙水圧計を孔内に計 2 個設置することとした。試験孔 1 には、同仕様・数量の温度計および間隙水圧計に加えて、土圧計を計 4 個（緩衝材ブロックの底盤 1 個、天端 1 個、側面 2 個）、水分分布を把握するための比抵抗トモグラフィ電極を計 108 個（3 断面、1 断面につき 10 度間隔で外周に計 36 チャンネル）設置することとした。各孔における詳細なセンサー配置等については次

項で述べる。

表 3.3-2　計測機器一覧

計測項目	計測器/センサー	型番	分解能	1 孔当たり数量
土圧 （全応力）	土圧計	東京測器社製 KDE-1MPA	0.75～0.80 kPa	4 個 （試験孔 1 のみ）
水圧	水圧計	東京測器社製 KW-10C	0.005 m	2 個 （試験孔 1・2）
緩衝材温度	モールド型被覆 測温抵抗体	佐藤商事社製 TJP-CT05Y3- 20M	0.1℃	12 個 （試験孔 1・2）
ヒーター温度	シース測温抵抗 体＋専用ロガー	八光電機 特注製作品	―	制御用 3 個、 計測用 1 個 （試験孔 1・2）
比抵抗	電極、ケーブル	大日本ダイヤコ ンサルタント 特注製作品	―	108 個 （36 個×3 段） （試験孔 1 のみ）
比抵抗	比抵抗測定器	ABEM 社 TerrameterLS	―	1 台 （試験孔 1 のみ）

土圧計と水圧計はひずみを測定する計測機器であり、校正によりあらかじめ各計測機器に設定した校正係数と測定されたひずみ値の変化分とを乗じて土圧および水圧の値を算出する。土圧と水圧の算出式をそれぞれ式 3.3-1、式 3.3-2 に記載する。

$$P_S=C_S\times\varepsilon_S \qquad \text{式 3.3-1}$$

$$P_W=C_W\times\varepsilon_W \qquad \text{式 3.3-2}$$

ここで、P_S および P_W はそれぞれ土圧と水圧（kgf/cm²）、C_S および C_W はそれぞれ土圧と水圧に関する校正係数（kgf/cm²/10⁻⁶）、ε_S および ε_W はそれぞれ土圧計と水圧計により計測された初期ひずみからの指示値の変化（×10⁻⁶）である。

(3)　試験資機材の試験孔への設置

前項までに述べた試験資機材を幌延深地層研究センター地下施設の 350 m 坑道・試験坑道 5 に搬入し、試験孔 1 と 2 に設置した。各試験孔への設置手順は以下の通りである。

・絶縁塗料を塗布し乾燥させた緩衝材定置治具の底盤を試験孔の上に定置し、耐熱性シリコーン系シーリング材で止水処理を施しながらヒーターを収納する本体チューブをボルトで固定する。
・緩衝材ブロックを 1 段ずつ緩衝材定置治具の底盤上に積み重ねていく。積み重ね順は後述する。
・緩衝材ブロックの内部に計測センサーを設置する場合には、あらかじめ緩衝材ブロックに溝切加工を施し、溝の内部にセンサーを設置する。設置後の溝には、当該ブロックと同じ初期水分量のベントナイト粉末を充填する。
・緩衝材を 12 段目まで設置したら、緩衝材定置治具の上蓋を設置し、図 3.3-7 で示した止水処理を施す。ねじボルト 4 点で上下の蓋を固定する。

・計測センサーからデータロガーに接続されるケーブルが設置時の妨げとならないように処理する。
・試験孔の底部に水圧計を設置し、埋没するまで孔底に 5 号珪砂を充填する。
・チェーンブロックを用いて試験体を持ち上げ、孔内に降ろして定置する。
・試験孔の壁面と試験体の間、および試験体の上部に 5 号珪砂を充填する。珪砂の上部に水圧計を設置し、埋没するまで孔上部に珪砂を充填する。
・計測センサーのケーブルをデータロガーに配線する。
・ヒーター本体および制御盤を組み立てて配線する。

各試験孔における緩衝材ブロックの積み重ね順は図 3.3-8 の通りとした。海外での原位置試験から、100℃を超える温度での加熱にともなう蒸気の発生・移動により、上部ほど飽和度が低いという水分分布の鉛直方向の不均質性が確認されている（Kaufhold et al., 2021）。また、上部に位置していた緩衝材ブロックに多くのクラックが認められ、その理由として沸騰のためにより乾燥した状態になったこと（Wersin et al., 2021）が示唆されている。したがって、よりクラックが生じやすいと考えられる高水分量およびドーナツ型の緩衝材ブロックを上部に位置するように設置した。また、各試験孔における扇形の緩衝材ブロックの定置方向は図 3.3-9 の通りとした。水分分布の鉛直方向の不均質性が生じる可能性を考慮し、同じ条件の緩衝材ブロック 2 個が同じ方向で定置されるようにした。

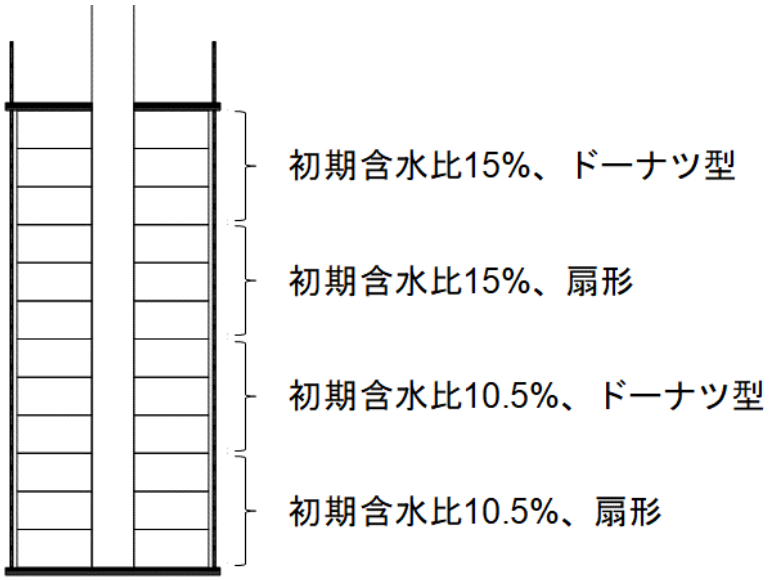


図 3.3-8　緩衝材ブロックの積み重ね順（2 孔共通）

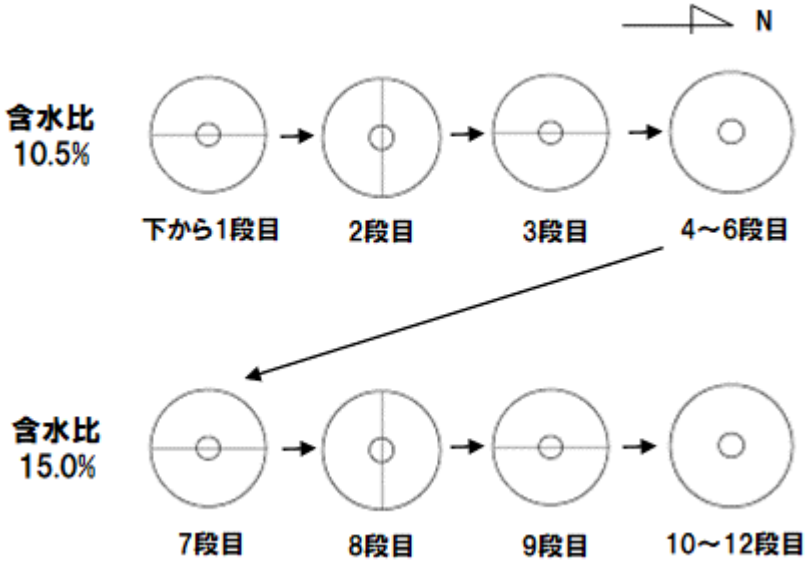
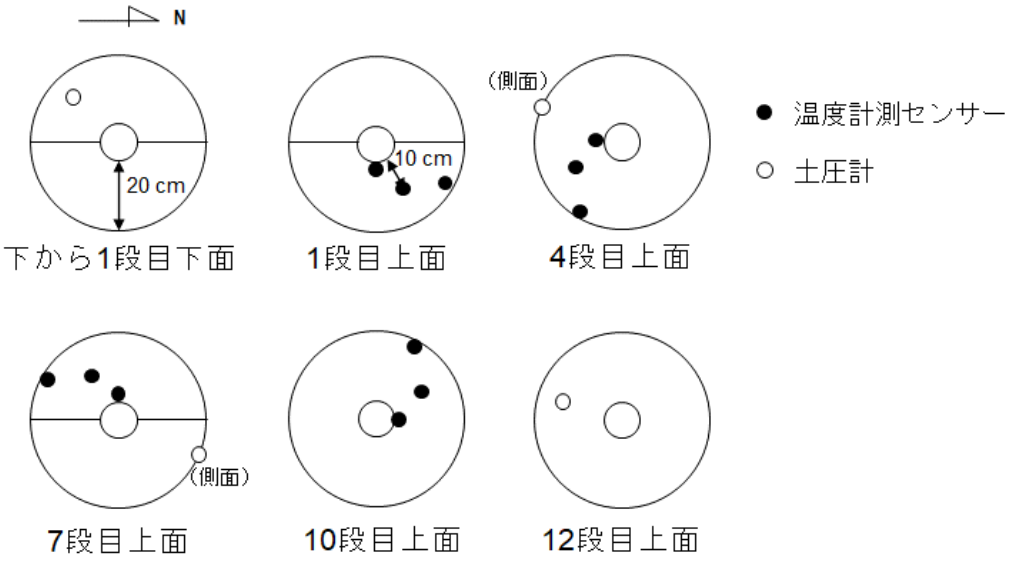
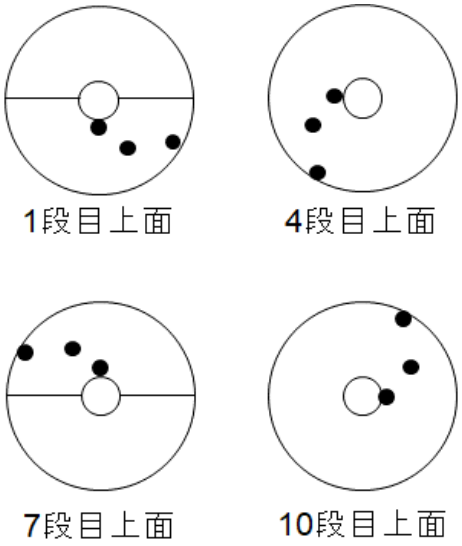


図 3.3-9　緩衝材ブロックの定置方向（2 孔共通）

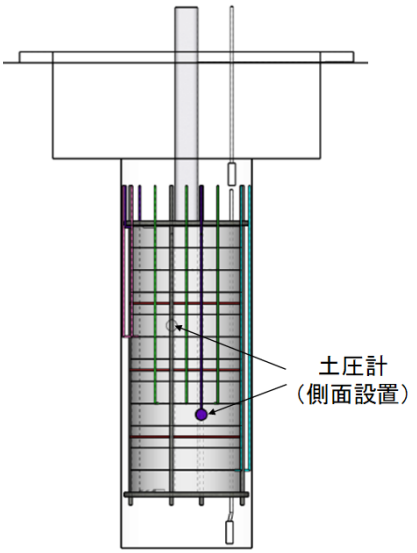
緩衝材ブロック内に設置する土圧計および温度計測センサーの配置は、扇形ブロックの定置方向と干渉しないように図 3.3-10 の通りとした。土圧計は、試験孔 1 において、下から 1 段目のブロックの下段と 12 段目のブロックの上段（図 3.3-11）、および下から 4 段目と 8 段目のブロックの側面に対向するように（図 3.3-12）、それぞれ溝を切り欠いて設置した。温度計測センサーは、試験孔 1 と 2 の両方において、下から各 1 段目、4 段目、7 段目、10 段目の各上面（同条件で積み重なった 3 段の緩衝材ブロックのうち、下から 1 段目と 2 段目の間）に、緩衝材内側からの距離が 0 mm、100 mm、200 mm となるように 3 点ずつ設置した（図 3.3-13）。また、水圧計は図 3.3-14 に模式的に示したように、試験孔 1 と 2 の両方において、試験体の下部と上部の珪砂充填部にそれぞれ埋没させる形で設置した。試験坑道 5 の路盤高さを基準とした水位計の設置高さを表 3.3-3 に示す。これらの測定センサーに接続されているケーブルは坑道に設置したデータロガーに接続し、各パラメータの連続測定が可能となるようにした。



(a) 試験孔 1



(b) 試験孔 2



(c) 側面

図 3.3-10　緩衝材ブロック内の計測センサーの配置図

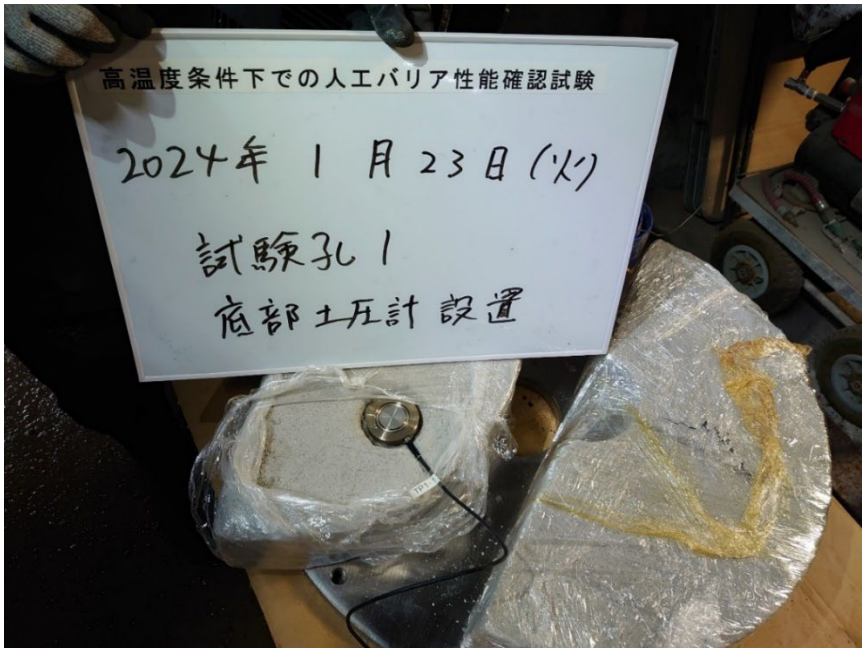


図 3.3-11　緩衝材底部への土圧計設置状況の一例

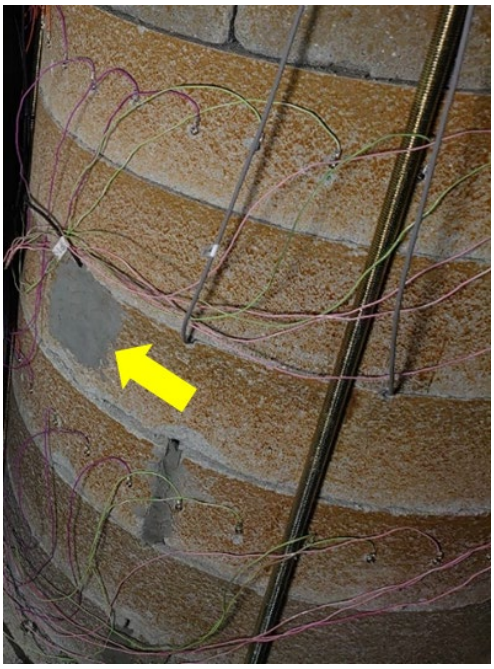


図 3.3-12　緩衝材側面への土圧計設置状況の一例（矢印部分）

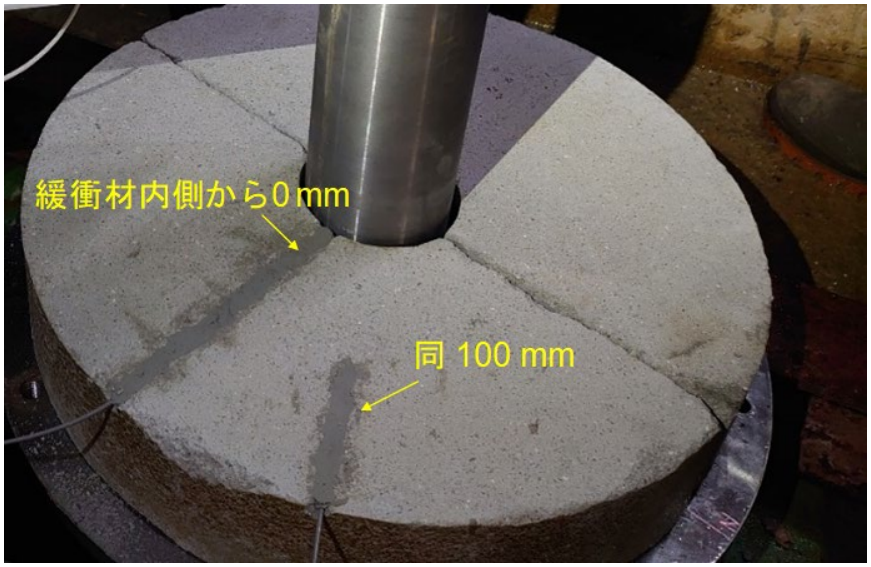


図 3.3-13　温度計測センサーの設置状況の一例

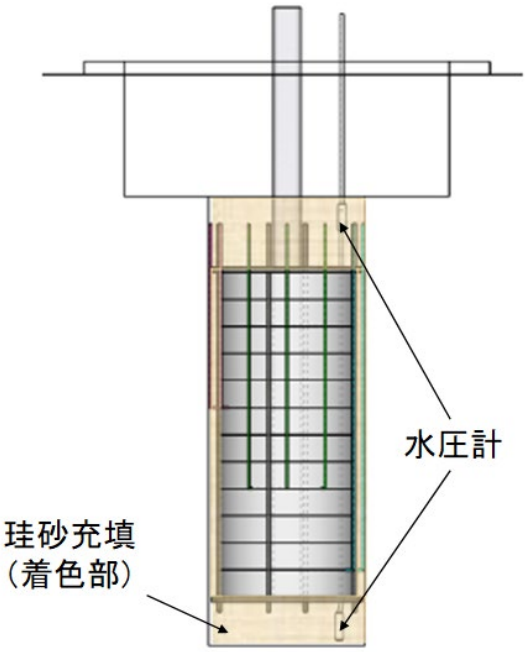


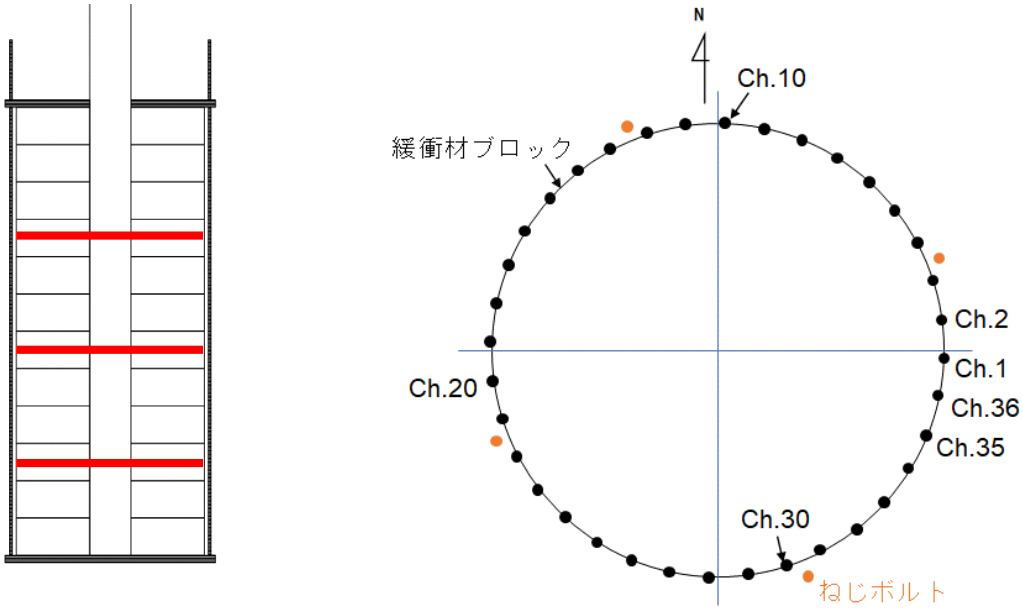
図 3.3-14　水圧計の設置状況の概略図

表 3.3-3　水位計の設置高さ（試験坑道 5 の路盤高さを基準位置とした場合）

設置場所	設置高さ（m）
試験孔 1 上部	-0.56
試験孔 1 下部	-2.04
試験孔 2 上部	-0.52
試験孔 2 下部	-1.99

比抵抗トモグラフィの電極は、試験孔 1 において、下から 3 段目、6 段目、9 段目の緩衝材ブロックの各側面に、東から 2.5°南にずらした位置を始点として、10°につき 1 点ずつ設置した（各段 36 点、3 段合計 108 点；図 3.3-15）。始点をずらした理由は、東を始点として南に 67.5°、157.5°、247.5°および 337.5°の位置に配置されているねじボルトとの干渉を避けるためである。電極には頭部直径 3 mm、長さ 10 mm のねじを使用し、R 端子の穴に通して緩衝材ブロック内にねじを埋め込んだ（図 3.3-16）。R 端子の先には被覆を剥いだ電線を圧着させ、坑道に設置した計測用のコネクタボックスを通じて測定器と接続した。

本研究での比抵抗トモグラフィの測定では二極法を採用し、同測定において必要となる遠電極を 350 m 試験坑道上に 2 点設置した（図 3.3-17）。遠電極は坑道壁面に掘削されたボーリング孔内に設置されている。これらのボーリング孔を水で満たし、試験体および遠電極のそれぞれに接続された電線を測定器に接続してから比抵抗トモグラフィの測定を実施した。



(a) 電極設置断面（赤線部分）　　(b) 各断面上の電極配置図

図 3.3-15　比抵抗トモグラフィの電極設置状況の概略図

(a) 電極ネジ-R 端子-ケーブルの接続状況　　(b) 試験体への設置の様子

図 3.3-16　比抵抗トモグラフィの電極設置

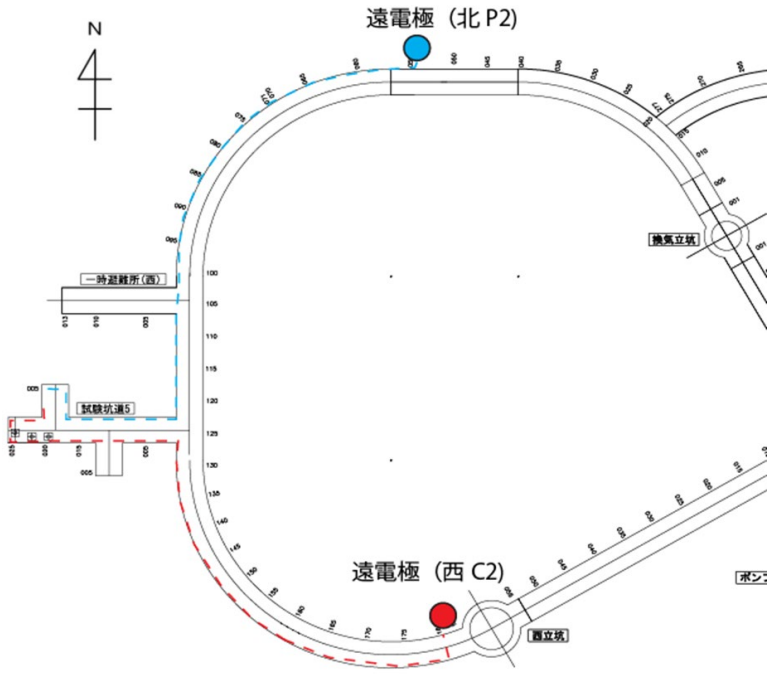


図 3.3-17　比抵抗トモグラフィの遠電極設置位置（350 m 試験坑道上）

試験孔の底部に水圧計を設置する際には、ポンプにより孔内を排水した（図 3.3-18)。試験体の定置およびその後の珪砂充填の際には排水を止め、孔内への自然湧水がある状態で作業を行った。設置終了後も試験孔への給水および排水は実施せず、水位が各試験孔のコンクリートピットの天端高さにある状態を維持した。なお、この状態での試験孔 1 および 2 の湧水量は、それぞれ約 0.01 L/min.、0.02 L/min.と見積もられている（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, 2019)。

図 3.3-18　試験孔内の排水時の様子（試験孔 1）

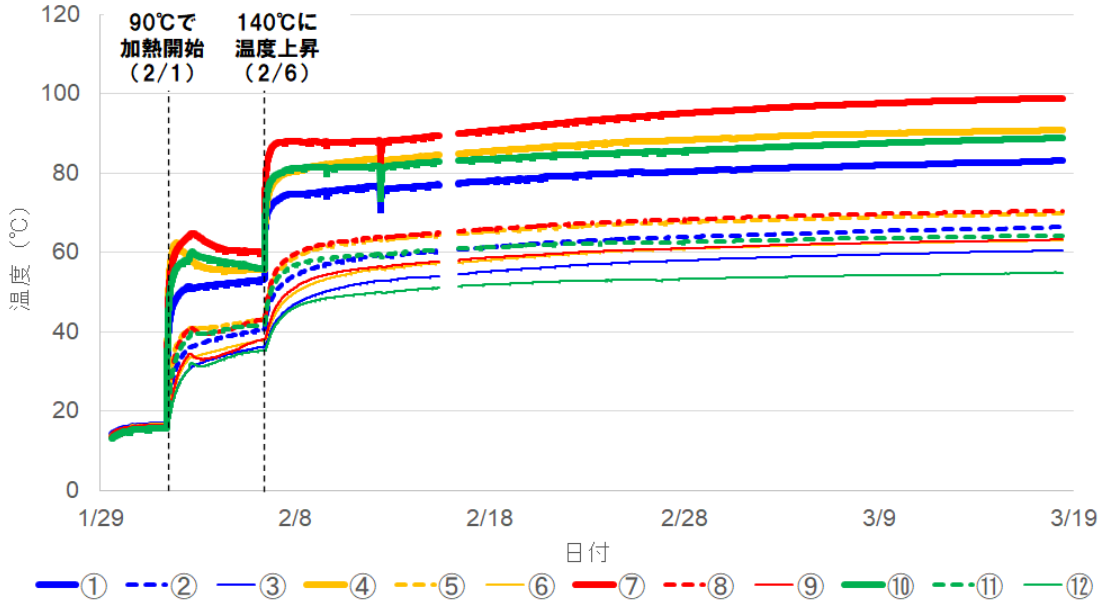
(4) 試験の開始

(3) に示した試験孔 2 孔への試験体の設置を 2024 年 1 月 29 日に完了し、1 月 31 日より温度計測センサー、土圧計および水圧計の連続計測を開始した。2 月 1 日に、ヒーター設定温度を 90℃として加熱を開始した。ヒーター温度や試験孔での不具合がないことを確認し、2 月 6 日に、ヒーター設定温度を 140℃に上昇させた。

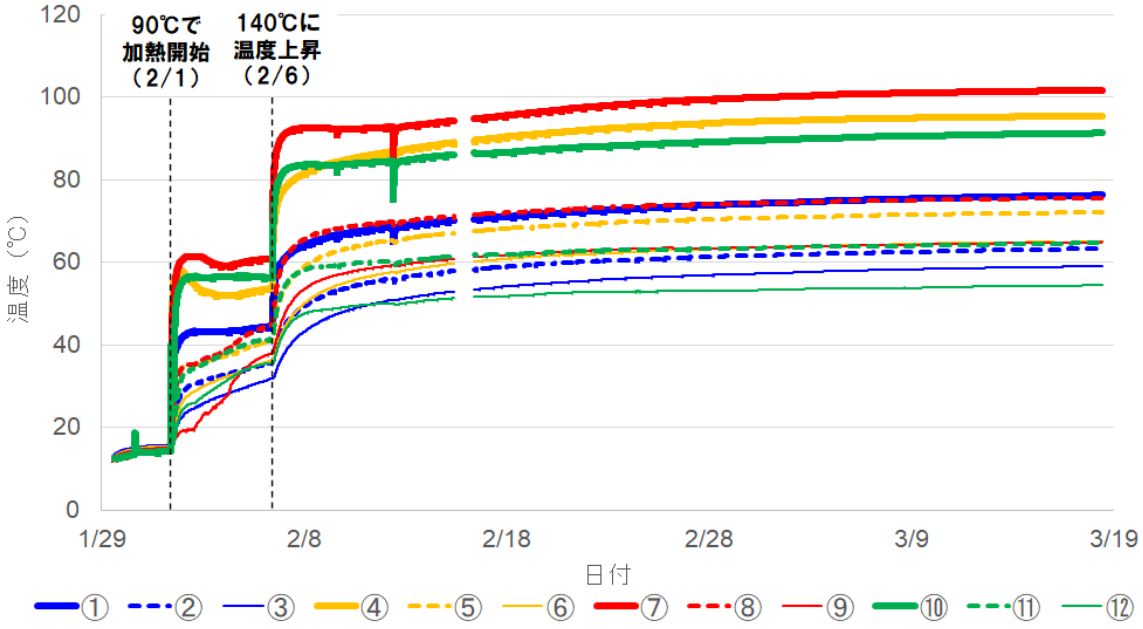
緩衝材ブロック中の温度分布の計測結果を図 3.3-19 に示す。ヒーター加熱前の温度計測値はいずれのセンサーでも 15℃前後であった。ヒーター温度 90℃での加熱を開始すると、試験孔 1 では、緩衝材内側から 0 mm、100 mm および 200 mm でそれぞれおよそ 50～65℃、35～40℃および 30～35℃の温度を示した。ヒーター温度を 140℃に上昇させると、緩衝材内側から 0 mm のセンサーではおよそ 70～85℃まで速やかに上昇し、その後も上昇が継続している。緩衝材内側から 100 mm および 200 mm のセンサーでも 140℃での加熱によりそれぞれおよそ 55～60℃、50～55℃まで温度が上昇し、その後も上昇が継続している。緩衝材の内側から離れた地点ほど温度上昇の速度が小さく、緩衝材中の熱伝導の影響によるものと考えられる。緩衝材内側からの距離が同じセンサー間で比較すると、下から 7 段目の緩衝材ブロック上部（⑦～⑨）、次いで下から 4 段目上部（④～⑥）の順に温度が高く、下から 1 段目（①～③）および 10 段目（⑩～⑫）では相対的に温度が低かった。試験体の中央に近い場所ほど、孔内の湧水や坑道の大気による冷却の影響を受けにくく、相対的に高い温度を示したと考えられる。3 月 18 日の時点で、もっとも高い温度はセンサー⑦で計測された 98.9℃であった。

試験孔 2 における温度変化の傾向も試験孔 1 と概略的には同様であったが（図 3.3-19b）、表 3.3-4 に示すように、下から 1 段目の緩衝材ブロックでは試験孔 1、それより上部では試験孔 2 の方が温度の高い傾向にあった。地下水の湧出状況など、試験孔間での地質環境の違いに起因する可能性が考えられる。3 月 18 日の時点で、もっとも高い計測温度はセンサー⑦で計測された 101.6℃であった。

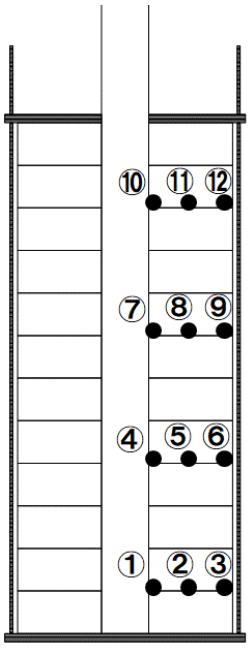
なお、2 月 9 日および 2 月 12 日のわずかな温度低下はメンテナンスの影響、2 月 15 日～16 日に認められるデータ欠損期間は停電によるものであり、これ以降に示す全応力および水圧の計測データについても同様である。



(a) 試験孔 1 での温度変化



(b) 試験孔 2 での温度変化



(c) センサー設置位置の概略図（2 孔共通）

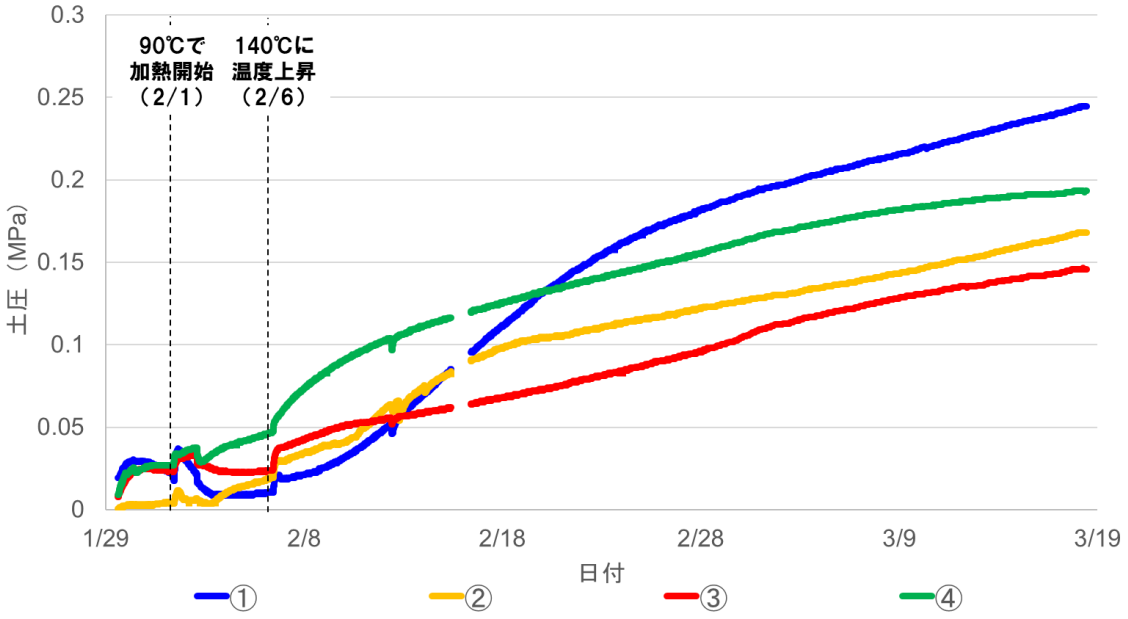
図 3.3-19　試験孔内での温度の計測結果

表 3.3-4　同一のセンサー位置における試験孔 1 の温度と試験孔 2 の温度差（3/18 11:00 時点）

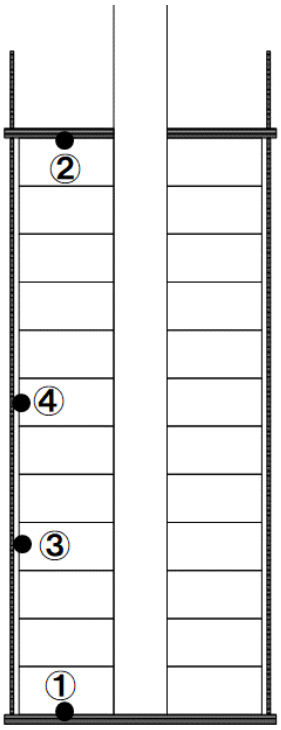
センサー位置	①	②	③	④	⑤	⑥
温度差（℃）	6.8	3.2	1.4	-4.5	-2.3	-1.7
センサー位置	⑦	⑧	⑨	⑩	⑪	⑫
温度差（℃）	-2.7	-5.0	-1.6	-2.4	-0.4	0.4

試験孔 1 の温度計測値から試験孔 2 の温度計測値を引いた値である。

土圧計による全応力の計測結果を図 3.3-20 に、水圧計の計測結果を図 3.3-21 にそれぞれ示す。ヒーターによる加熱の開始前に、試験体上部（図 3.3-20 の②）以外の 3 つの土圧計で 0.02 MPa 程度の全応力を示しており、この値は試験孔底部に設置した水圧計（図 3.3-21 の①）での計測値と同程度であった。加熱前であり熱応力の影響はないこと、試験体の定置直後であり膨潤応力の影響も小さいと考えられることから、この全応力の値は試験孔内の水圧を反映していると考えられる。ヒーター温度 90℃での加熱を開始すると、すべての土圧計で 0.01 MPa 程度の値の上昇が認められた。熱膨張による緩衝材ブロックの応力増加など、加熱による影響と考えられる。なお、ヒーター加熱開始前から 2 月 2 日ころにかけて、緩衝材ブロックの側面に設置された土圧計（図 3.3-20 の③と④）のみでなく緩衝材定置治具の底盤と一番下の緩衝材ブロックの間に設置された土圧計（同①）でも水圧に起因すると考えられる全応力の上昇が認められた。定置治具の底盤と緩衝材ブロックの隙間を通じて地下水が浸透したことに起因する可能性があるが、その後、水圧の値が一定である一方で①の土圧計での全応力の値は減少に転じていることから、仮に地下水の浸透が生じていてもその経路は緩衝材の膨潤により閉塞されたと考えられる。ヒーター温度を 140℃に上昇させた際にも、すべての土圧計で加熱による影響と考えられる 0.01 MPa 程度の値の上昇が認められた。その後、全応力の値は継続的に上昇している。この全応力の上昇の程度は、上記の水圧や熱の影響による上昇よりも大きいことから、地下水の浸潤による膨潤応力の増加によるものと考えられる。

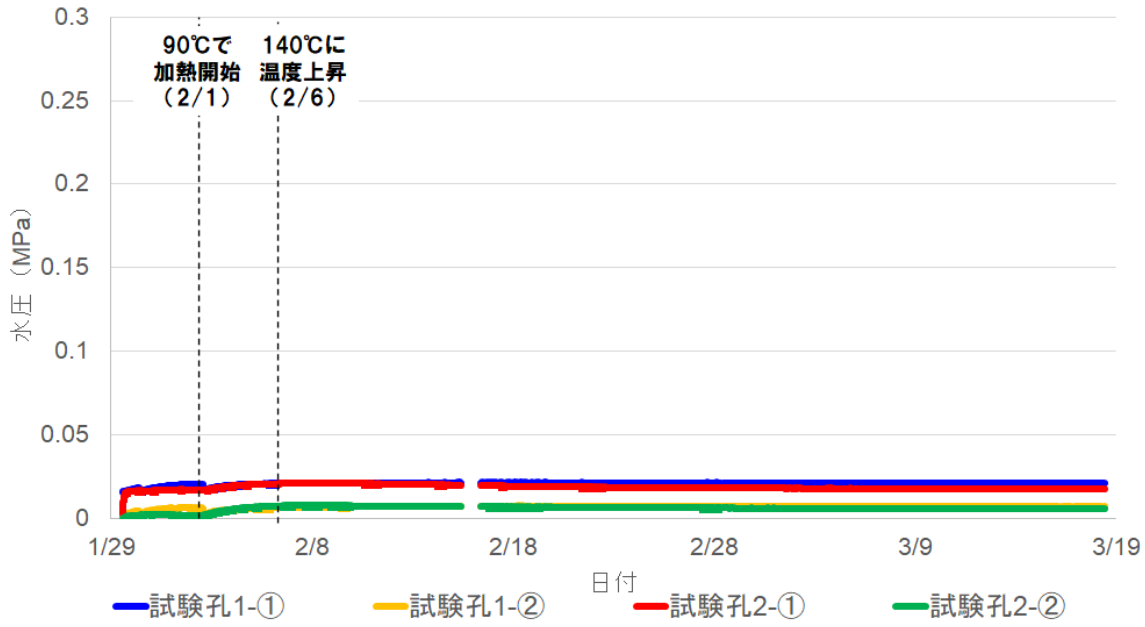


(a) 試験孔 1 での全応力変化

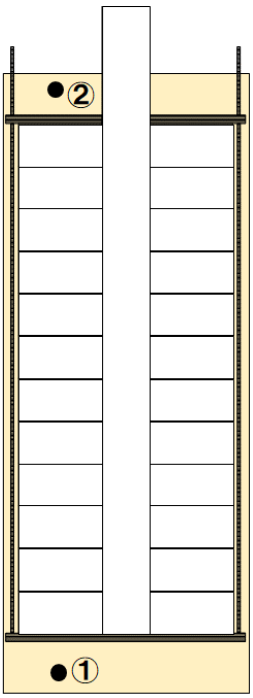


(b) センサー設置位置の概略図

図 3.3-20　試験孔内での全応力の計測結果



(a) 試験孔 1 および 2 での水圧変化



(b) センサー設置位置の概略図（2 孔共通）
着色部分は珪砂充填部を意味する。
図 3.3-21　試験孔内での水圧の計測結果

比抵抗トモグラフィ測定は、試験体を試験孔 1 に設置する前と設置直後の 2 回実施した。前者は電極の導通確認を、後者は比抵抗値の初期値の取得を目的としたものである。

試験孔内設置前の測定は、350 m 試験坑道上に設置した遠電極と導通がなかったため、試験体の上端および下端に別途遠電極を設置して実施した。抵抗測定値のプロットを図 3.3-22 に示す。一部の測定値がマイナスを示しており、これは遠電極が測定点の近くに位置している影響と考えられる。また、同測定での隣り合う電極間（距離 4.3 cm）での測定値分布を図 3.3-23 に示す。下から 6 段目の緩衝材ブロックの周囲に設置した電極では、抵抗測定値は 30～40 Ω を示し大きな変動は認められなかった。一方、下から 3 段目および 9 段目では、測定値がほぼ 0 Ω を示す点が 2 点ずつ認められ、2 点は同一断面上で 18 または 19 チャンネル離れていた。下から 3 段目および 9 段目は扇形、6 段目はドーナツ型の緩衝材ブロックを設置しており（図 3.3-8）、1 断面での電極設置数が 36 チャンネルであることから、測定値の分布の違いは緩衝材ブロックの形状を反映しており、ブロックの分割部分で電気が流れにくくなっていることが示唆される。

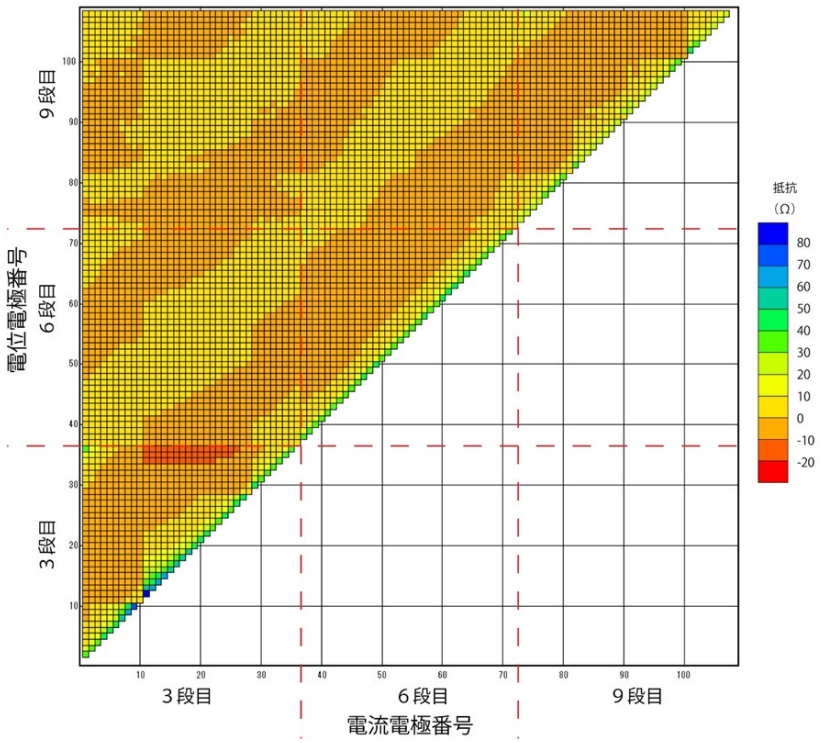


図 3.3-22　試験孔内設置前の抵抗測定値のプロット

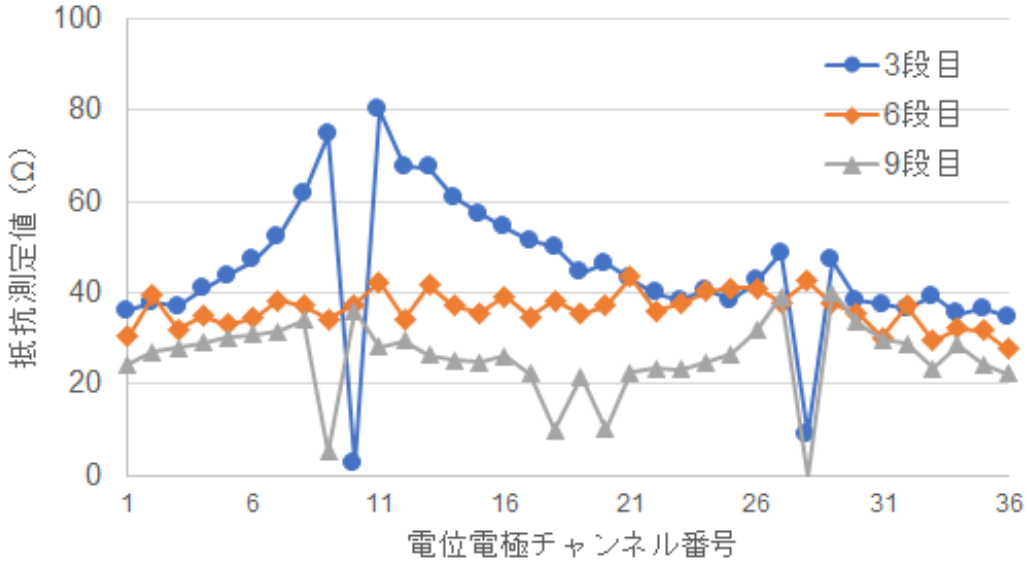


図 3.3-23　試験孔内設置前の測定における隣接電極間の抵抗測定値分布

試験体を試験孔 1 に設置した直後の抵抗測定値のプロットを図 3.3-24 に示す。こちらの測定では遠電極が測定場所から十分に離れているため、比抵抗値はすべて正の値を示した。データ解析にあたり除外すべき不良データはないと判断された。

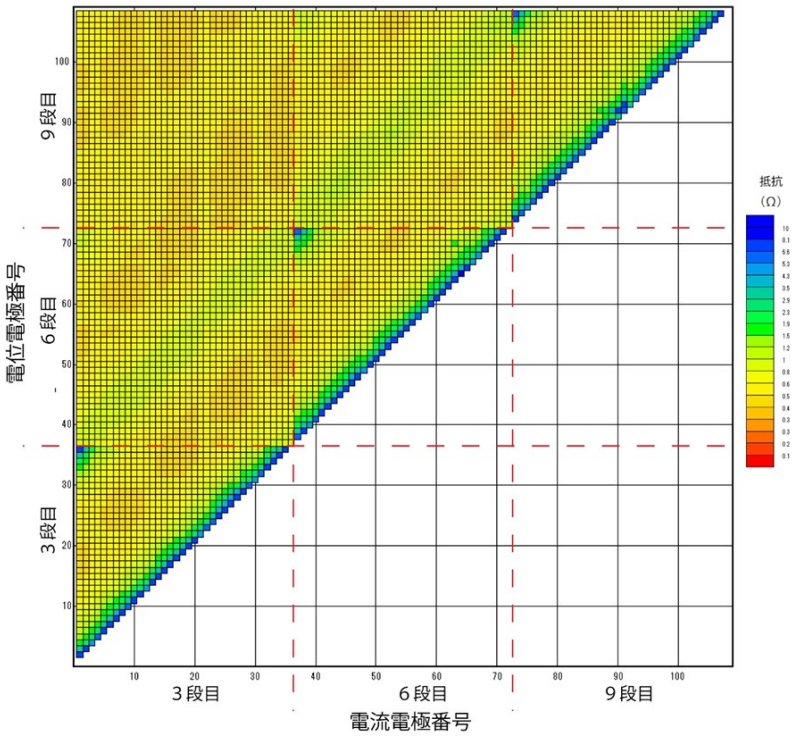


図 3.3-24　試験孔内設置後の抵抗測定値のプロット

この測定結果を三次元の比抵抗分布に変換するための解析を、図 3.3-25 に示すフローチャートに従って実施した。解析には比抵抗解析ソフト E-Tomo を用いた。試験体の形状および設置した電極の座標から、有限要素法（Finite Element Method：FEM）のグリッドを図 3.3-26 の通りに作成した（図 3.3-25 の①）。作成したグリッドをもとに、全データの平均見掛け比抵抗を計算し、その平均値を用いた均質なモデルを初期モデルとして作成した（図 3.3-25 の②）。次に、初期モデルにおいて実際の測定時と同じ電極配置で測定した場合の電位（理論電位）を FEM により計算した（図 3.3-25 の③）。実際の測定値と算出された理論電位の残差を計算し（図 3.3-25 の④）、残差が減少しなくなるまで制約付き最小二乗法によりモデルの修正を繰り返した（図 3.3-25 の⑤）。残差がほぼ一定の値に収束した結果を最終比抵抗モデルとし（図 3.3-25 の⑥）、その結果から比抵抗分布図を作成した。

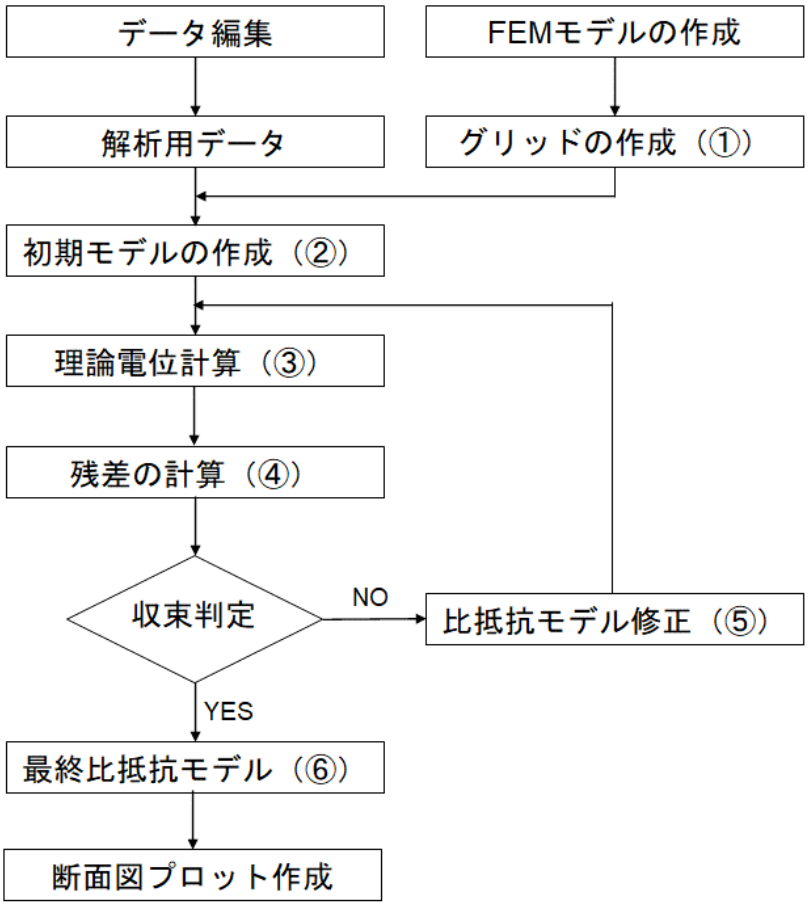
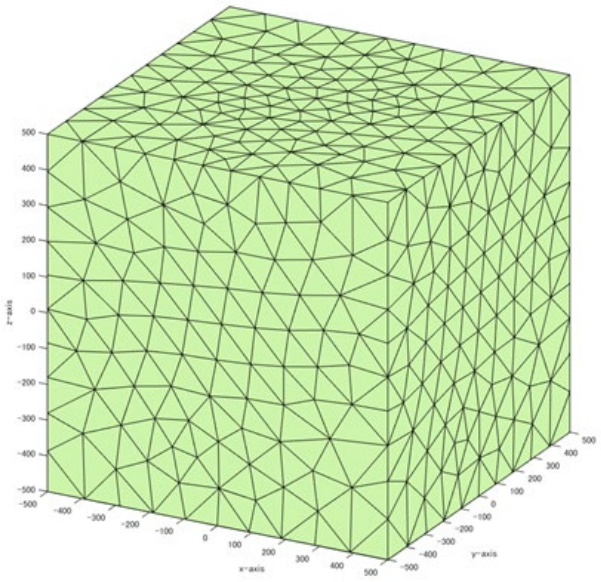
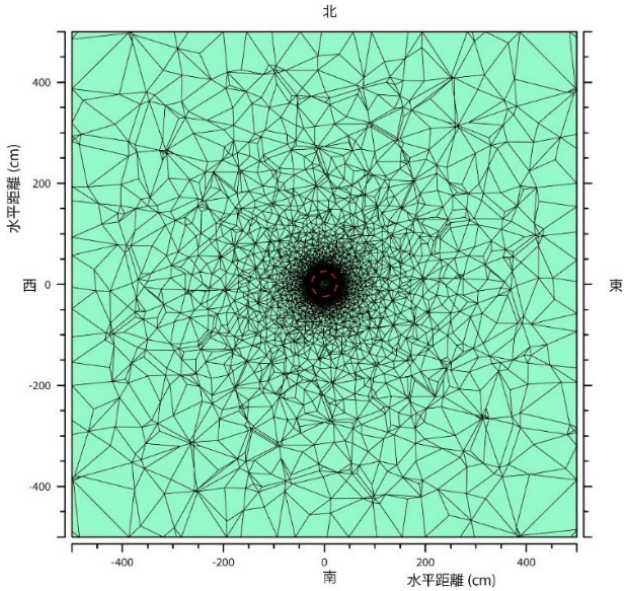


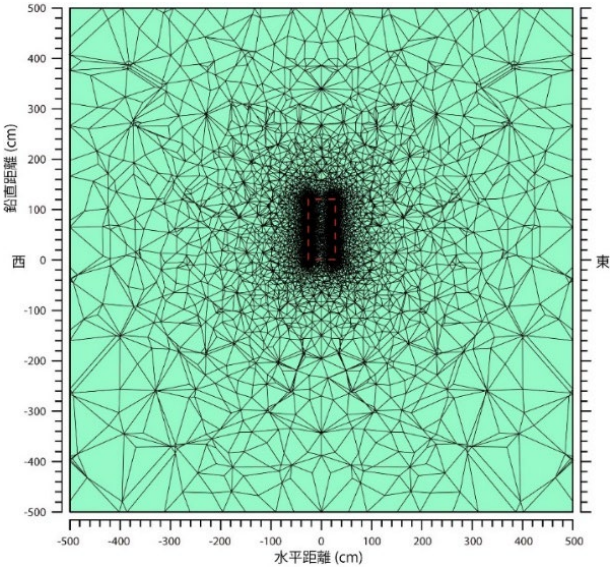
図 3.3-25　比抵抗トモグラフィ測定の解析に関するフローチャート



(a) 鳥瞰図



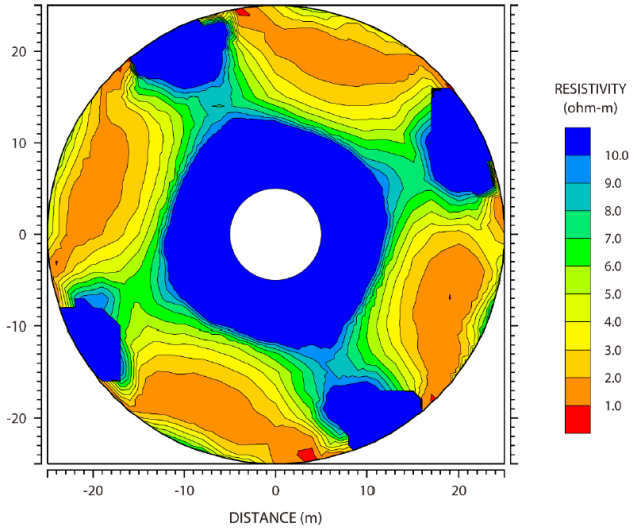
(b) 水平断面図（3 段目）



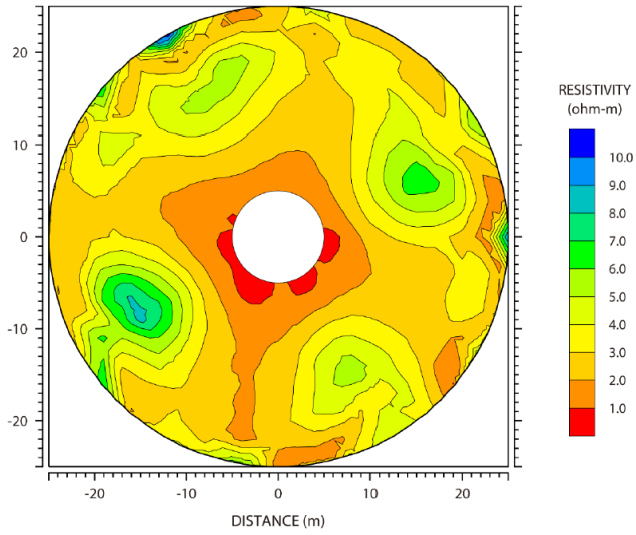
(c) 鉛直断面図（東西方向）

図 3.3-26　有限要素法グリッド
赤い点線は緩衝材ブロックの位置を示す。

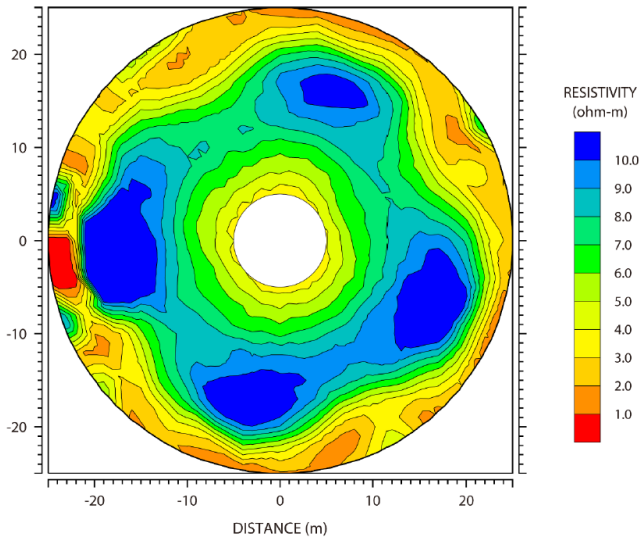
上記の方法により算出した比抵抗分布の測定結果を図 3.3-27 に示す。各水平断面に見られる 4 箇所の低比抵抗部分は、試験体のねじボルトの影響を受けていると考えられる。また、鉛直の断面図では、下から 4 段目と 5 段目の間、7 段目と 8 段目の間などに低比抵抗の部分が確認される。ただし、比抵抗分布は水分分布（飽和度）のみでなく、対象物質の種類や間隙率などさまざまな要素によって変化するため、今回の測定結果のみから試験体の水分分布を直接的に解釈できるものではない。今後取得される測定データに対して、今回の測定データを初期値とした変化率（測定データの比）にもとづく解析を実施することにより、水分分布の変化を把握していく予定である。



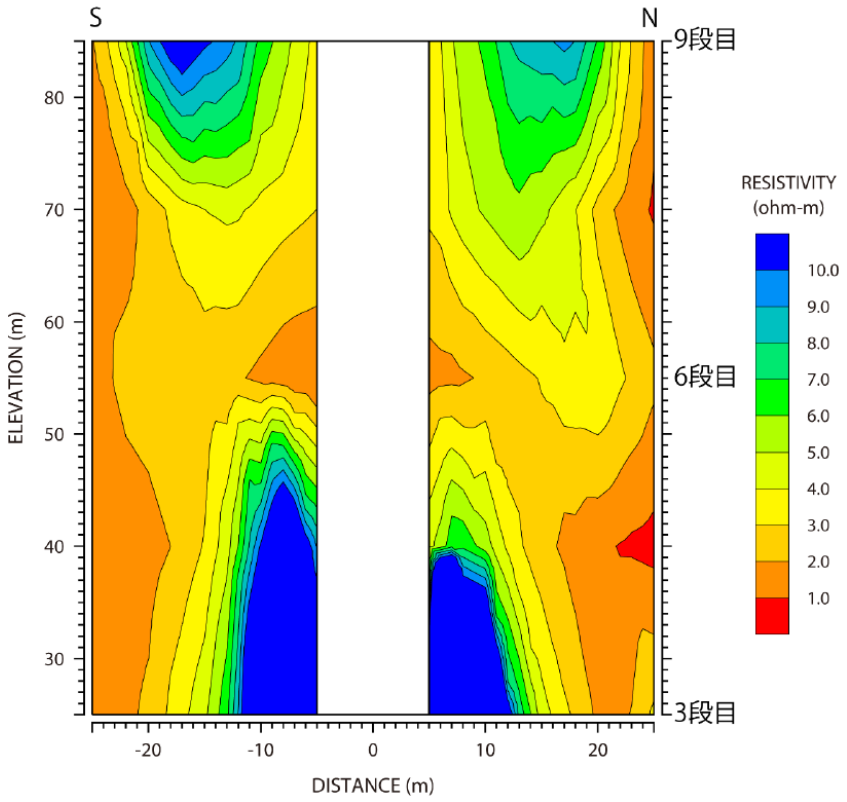
(a) 水平断面図（下から 3 段目）



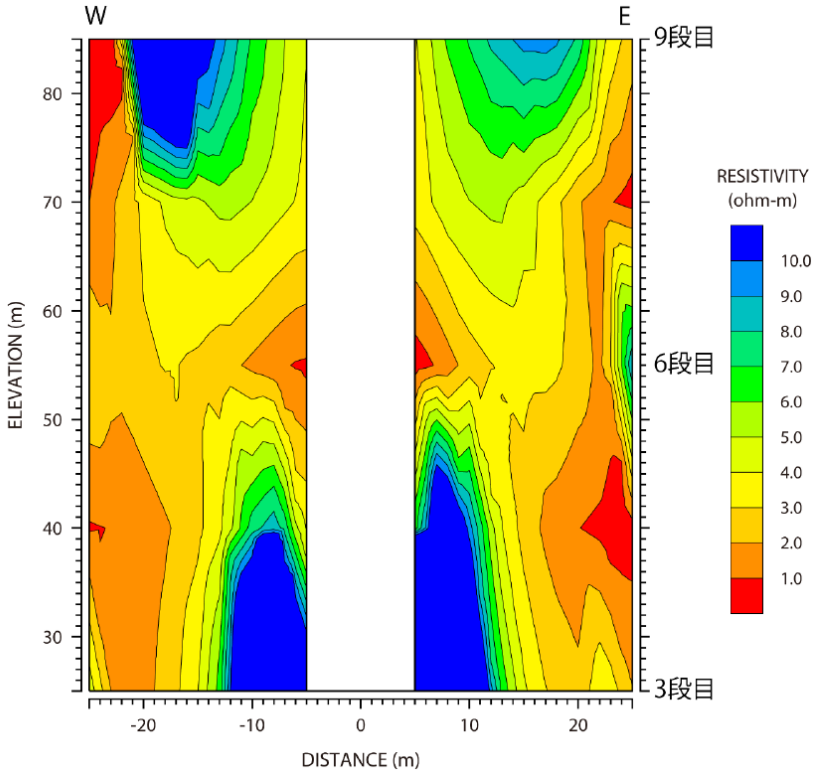
(b) 水平断面図（下から 6 段目）



(c) 水平断面図（下から 9 段目）



(d) 鉛直断面図（南北方向）



(e) 鉛直断面図（東西方向）

図 3.3-27　比抵抗分布の解析結果

3.3.3　成果と今後の課題

幌延深地層研究センターの地下施設において、緩衝材が 100℃超となった際に生じる現象の把握、および 100℃超の温度履歴を経た緩衝材への再冠水挙動等を明らかにするための工学的規模での原位置試験を開始した。地下施設の既存の試験孔 2 孔に、緩衝材ブロック、ヒーター、計測センサー等の試験資材を設置し、ヒーター温度 140℃での加熱を開始した。加熱開始から約 1 か月が経過した時点で、緩衝材ブロックのもっとも内側は 100℃に近い温度に到達しつつあること、緩衝材ブロック外側では地下水の浸潤によると考えられる膨潤応力の増加が生じていることなどがわかった。また、試験体を設置した直後の比抵抗トモグラフィの測定により、試験体内での比抵抗分布の初期値を取得することができた。

今後は、センサーでの計測を継続して試験孔内における温度、全応力および水圧に関するデータを継続的に取得する。また、比抵抗トモグラフィについても継続的に測定し、初期値からの変化率をもとに、試験体内の水分分布の経時変化に関する情報を取得していく。さらに、試験孔 2 においてはヒーターによる加熱を停止し、その後速やかに解体して、採取した緩衝材ブロックの水分分布や基本特性（膨潤圧、透水係数）および化学特性などに関する試験・分析を実施する。以上の調査研究により、緩衝材が 100℃超となった際にニアフィールドにおいて生じる現象の把握、および 100℃超の温度履歴を経た緩衝材において生じる特性変化を明らかにしていく予定である。

3.4. 100℃超を含む温度条件における緩衝材特性の評価

人工バリア設置から緩衝材が地下水で飽和するまでの過渡期における緩衝材の高温環境としては、図 3.4-1 に示すように、①岩盤側で地下水の浸潤により水分が上昇しながら高温状態（100℃超を含む）になる場合、②オーバーパック近傍においては、高温環境（100℃超を含む）によって初期の状態より水分量が低下し、その後、地下水が浸潤する場合が想定される（原子力発電環境整備機構, 2021）。

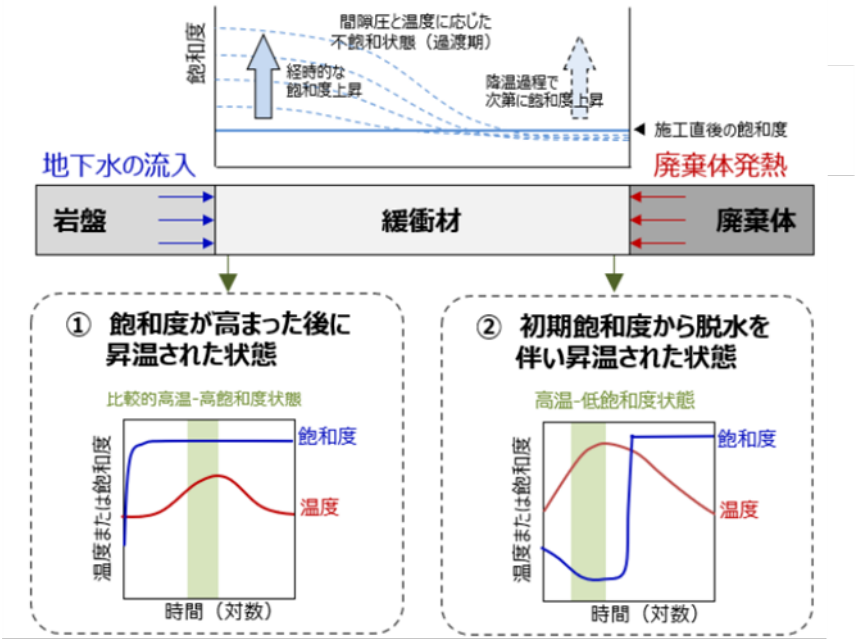


図 3.4-1　過渡期における緩衝材の温度環境（NUMO-TR-22-02 の P25 図 1 を基に作成）

図 3.4-1 の②の条件下における緩衝材の力学挙動に関する既往の研究として、熱履歴を与えた粉体のベントナイトを締め固めた供試体を用いた膨潤圧測定試験と膨潤変形試験を行い、熱履歴が膨潤特性に与える影響を実験的に調査した報告がある（小峯ほか、2007）。加熱温度 130℃以下、加熱期間 120 日以内では熱履歴が膨潤特性に与える影響は少ないが、加熱期間 365 日の条件になると膨潤変形特性が大きく低下したことが報告されている（小峯ほか、2007）。膨潤変形特性が大きく低下した要因として、熱履歴により鉱物的な変質を生じることなく、ベントナイト中のモンモリロナイト自身の陽イオンの吸着能力が低下したものと考えられている。このことから、数か月程度の比較的短期の加熱期間では膨潤特性の変化は小さいが、１年以上の過熱期間では膨潤特性の変化が大きくなる可能性が示唆される。

一方、図 3.4-1 に示した②では、締固められた後に熱履歴が与えられるため、粉体に熱履歴を与えた小峯らの試験とは条件が異なる。締固められた後に熱履歴が与えられると、比較的短期の過熱期間であっても、供試体の乾燥収縮やそれによるクラックが生じ、供試体内の密度の不均一性が生じ、それによりベントナイトの浸潤挙動を複雑にして浸潤挙動や膨潤性、透水性に影響を及ぼすことが懸念される。そこで、図 3.4-1 の②を想定し、熱履歴による緩衝材の浸潤挙動や膨潤性、透水性への影響を把握することを目的として、圧縮成形した供試体に対して熱履歴を与えた後、体積が拘束された条件下での浸潤試験、膨潤圧測定試験、透水試験を実施した。それぞれ、3.4.1 項、3.4.2 項、3.4.3 項に成果を述べる。

また、図 3.4-1 の①を想定した場合についても、高温状態での膨潤圧測定試験や、高温状態での変形試験を実施した。それぞれ、3.4.2 項、3.4.4 項に成果を述べる。

3.4.1. 熱履歴供試体への浸潤試験

(1) 背景と目的

図 3.4-1 に示すように、過渡期において、オーバーパック近傍では、高温環境(100℃超を含む)によって初期の状態より緩衝材の水分量が低下し、その後、地下水が浸潤する場合が想定される。このような環境下では、緩衝材が乾燥収縮してクラックが発生し、密度の不均一化や、それにより緩衝材の浸潤挙動や透水性に影響を及ぼすことが懸念される。本試験では供試体に熱履歴を与え、乾燥によって生じたクラックに水が浸潤することで、クラックが閉塞するか確認するため、エックス線 CT 装置を用いて測定及び観察を行った。

試験では、供試体の乾燥収縮量及びクラックの発生には乾燥前の含水比が大きく影響を及ぼすことが想定されたため、自然含水比及び高含水比(20%超)の供試体を対象に実施した。また、塩水が浸潤する場合では、透水性の増加や膨潤性の低下が生じることが報告されており、クラックが選択的な流路となる可能性や、飽和時に密度の不均一性が残存する可能性などが懸念される。このようなことから、浸潤水に蒸留水を用いた場合と幌延地下水相当の塩水を浸潤させる 2 ケースを実施した。

(2) 実施内容

①試験方法

本試験で用いるエックス線 CT 装置と概略図を図 3.4-2、図 3.4-3 に示す。本試験で用いるエックス線 CT 装置はキャノンメディカルシステムズ株式会社製 Alexion　Access を用いた。また、供試体への加熱方法は、恒温槽を用いて熱履歴を与えた。

図 3.4-2 エックス線 CT 装置

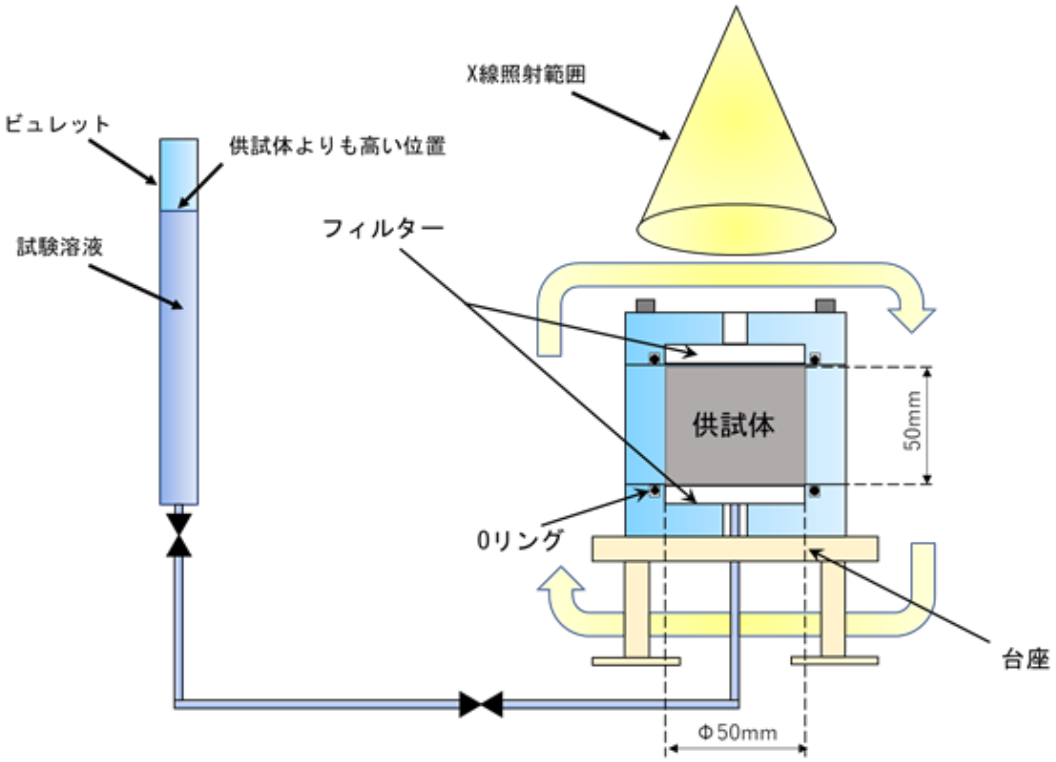


図 3.4-3 試験概略図

本試験では、クニミネ工業製の Na 型クニゲル V1 使用し、含水比を自然含水比及び含水比 23%程度に調整したものを用いた。供試体に浸潤させる試験溶液は蒸留水及び幌延地下水相当の NaCl 溶液とし、供試体よりも高い位置に初期の液面が来るようにビュレットを取付けた。供試体は直径 50mm、高さ 50mm とし、乾燥密度は加熱前の値が 1.4Mg/m³ となるように成形した。

なお、本試験で用いる試験装置内に、表 3.4-1 に示す状態のクニゲル V1 を入れた状態で X 線 CT 測定を実施した場合、得られた CT 値は、図 3.4-4 に示すように、湿潤密度ρ_t（Mg/m³）と以下のような相関関係がある。

$$\rho_t = 9.323 \times 10^{-4} \times \text{CT 値} + 0.7836 \qquad (3.4\text{-}1)$$

表 3.4-1 CT 値と湿潤密度の関係式の構築に用いた試料

試料 No.	乾燥密度[Mg/m³]	含水比[%]	湿潤密度[Mg/m³]	飽和度[%]	CT 値
1-1	1.39	23.28	1.72	66.89	994.09
1-2	1.39	15.17	1.60	43.46	883.45
1-3	1.39	7.76	1.49	22.13	778.12
1-4	1.19	7.76	1.29	16.59	544.12
1-5	1.60	7.76	1.72	30.43	1003.57
1-6	1.20	14.90	1.38	32.14	632.71
1-7	1.60	15.17	1.84	59.12	1141.70
1-8	1.20	23.28	1.47	49.91	720.60
1-9	1.60	23.28	1.97	91.29	1267.15

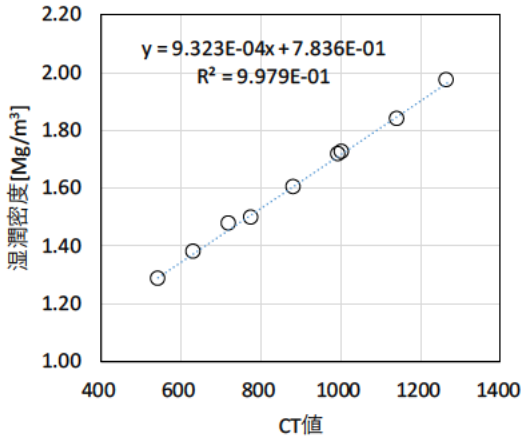


図 3.4-4 湿潤密度と CT 値の関係

試験ケースを表 3.4-2 に示す。熱履歴をあたえるものについては、供試体内の水分がなくなるまで数日程度 140℃で加熱する。

表 3.4-2 CT 測定の試験ケース

試験NO.	含水比	試験溶液	140℃熱履歴
CASE1-1	自然含水比（7%程度）	蒸留水	無
CASE1-2	自然含水比（7%程度）	蒸留水	有
CASE2-1	23%程度	蒸留水	無
CASE2-2	23%程度	蒸留水	有
CASE2-3	23%程度	NaCl（幌延地下水相当）	無
CASE2-4	23%程度	NaCl（幌延地下水相当）	有

試験手順供を以下に示す。

圧縮成形後に乾燥密度が 1.4 Mg/m³ になるように秤量する。

直径 50mm×高さ 50mm が作製できる治具内に秤量したベントナイトを入れ、万能試験機を用いて高さが 50mm になるように圧縮を行い、試料を作製する。

作製した供試体を治具から抜出し、CT 測定が行えるアクリル製セル(内径 Φ50mm×高さ 50mm)に入れる。

アクリル製セルに入った供試体を CT 装置の寝台上に置き、供試体の CT 測定を行う。CT 装置の寝台上から供試体を回収する。

熱履歴を加える場合は、恒温槽内で供試体を加熱する。天秤を用いて供試体の重量を測定し、供試体に含まれる水分がなくなるまで加熱する。

恒温槽から供試体を取出し、冷却後、アクリル製セル内に入れ、封をする。

試験溶液が入ったビュレットとアクリル製セルをチューブで繋ぎ、アクリル製セルを CT 装置の寝台上に水平になるよう台座の上に置く。(図 3.4-2 参照)

恒温槽乾燥後の CT を撮影する。

ビュレット及びアクリル製セル手前のバルブをゆっくり開け、浸潤を開始する。

浸潤開始後の CT を撮影する。

供試体の浸潤状況をみながら定期的に CT の撮影を飽和するまで行う。

CT 値が定常となる等の撮影したデータの解析結果から、供試体の飽和を確認した後、CT 測定を終了する。

②試験結果

図 3.4-5～図 3.4-10 に各試験ケースにおける中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果を示す。なお、熱履歴を与えたケースでは、乾燥前の状態も併せて示している。また、図 3.4-11 に熱履歴を与えたケースの供試体の内部状態を示す。

圧縮によって作製された供試体の初期の湿潤密度分布はいずれのケースも不均一であり、供試体の上端ほど湿潤密度が高く、供試体下部の両角ほど湿潤密度の低い領域が形成されている。熱履歴を与えたケースでは、乾燥により収縮し、クラックが生じているのが確認でき、含水比が高い CASE2 では、より大きなクラックが多数生じていた。

浸潤を開始した後は、供試体の下端から時間の経過とともに湿潤密度の高い領域が広がっていることから、浸潤が進んでいく様子が確認できた。また、クラックを有する供試体の場合でも、下端から徐々に湿潤密度の高い領域が広がっていることが各図からみられるため、クラックがある場所が優先的な流路になっているような挙動は観察されなかった。さらに、浸潤に伴うベントナイトの膨潤によりクラックが閉塞していき、試験終了時の飽和状態ではクラックは確認できなくなった。また、試験終了時の飽和状態では、いずれの試験ケースも不均一な湿潤密度分布を形成しており、圧縮成型時と同様、供試体の上端ほど湿潤密度が高く、供試体下部の両角ほど湿潤密度の低い領域が形成されていた。

また、幌延地下水相当の NaCl 溶液を用いた場合の CASE2-4 でも、浸潤に伴いクラックが閉塞していることが確認できた。

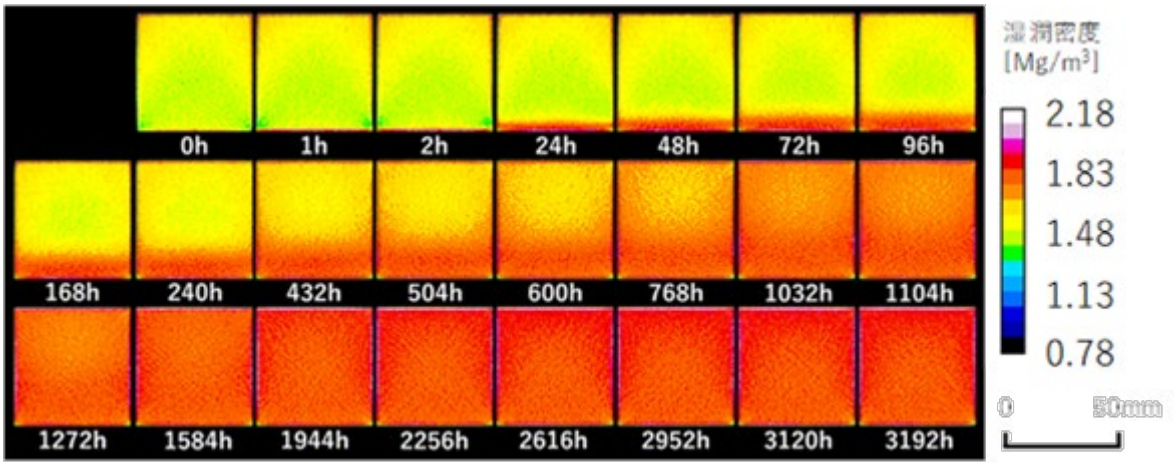


図 3.4-5 CASE1-1 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果

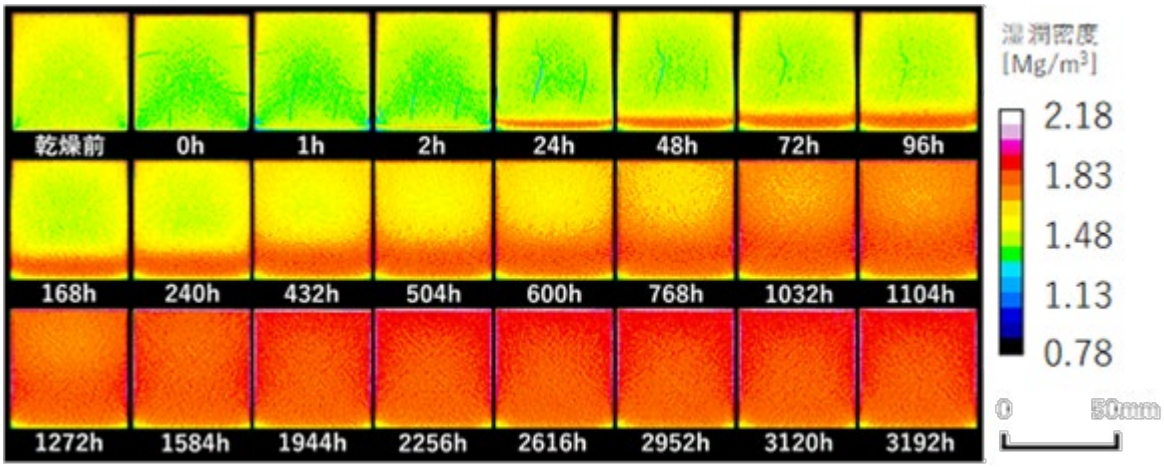


図 3.4-6 CASE1-2 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果

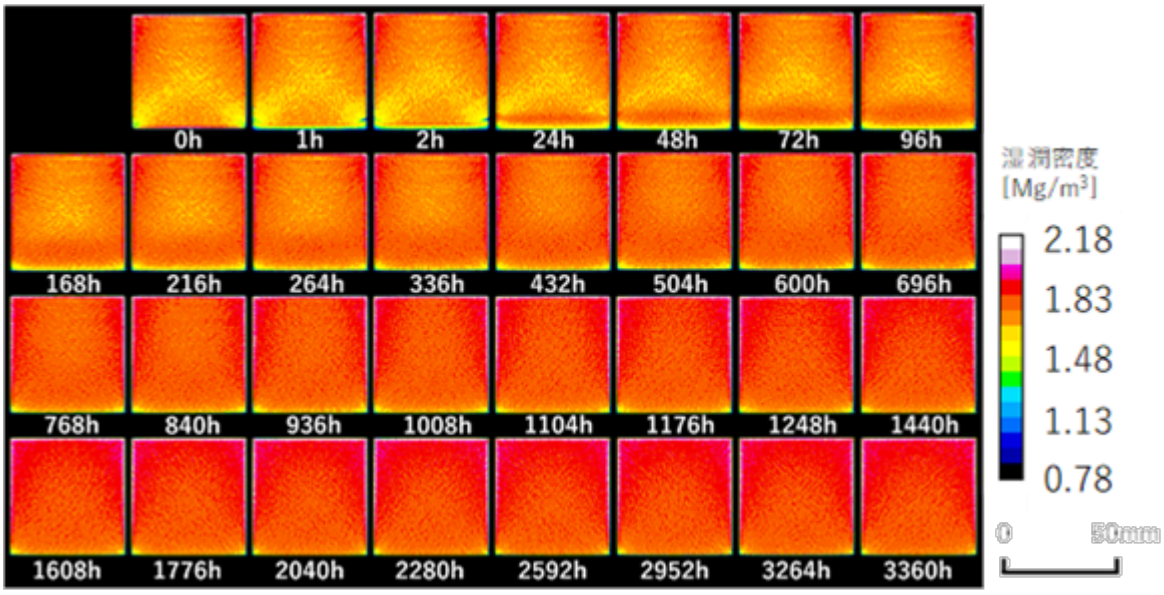


図 3.4-7 CASE2-1 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果

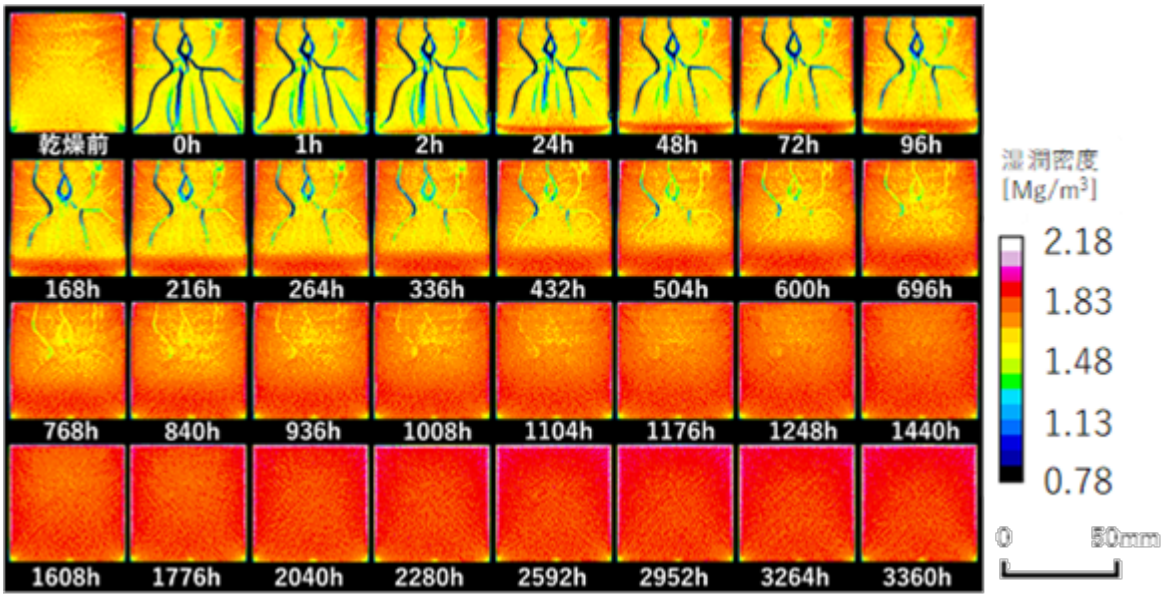


図 3.4-8 CASE2-2 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果

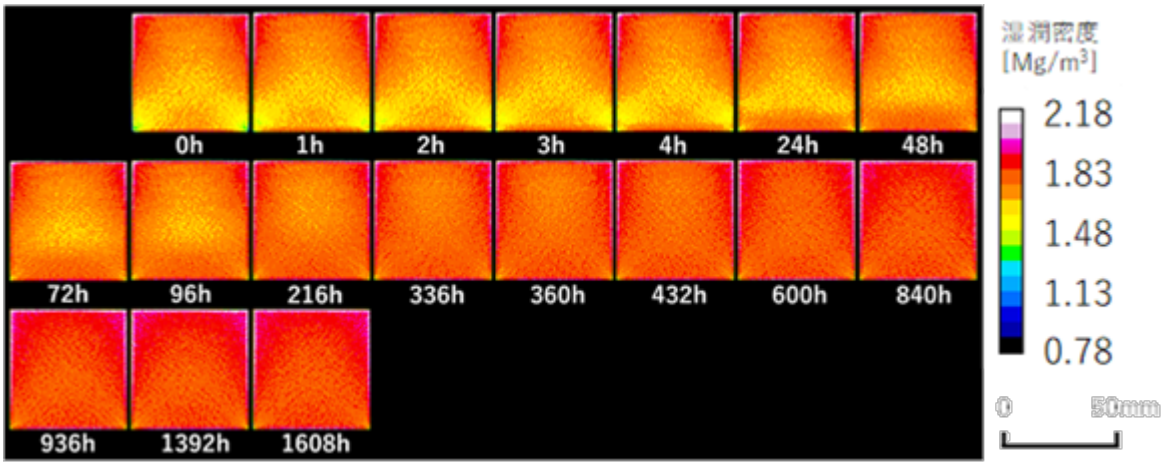


図 3.4-9 CASE2-3 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果

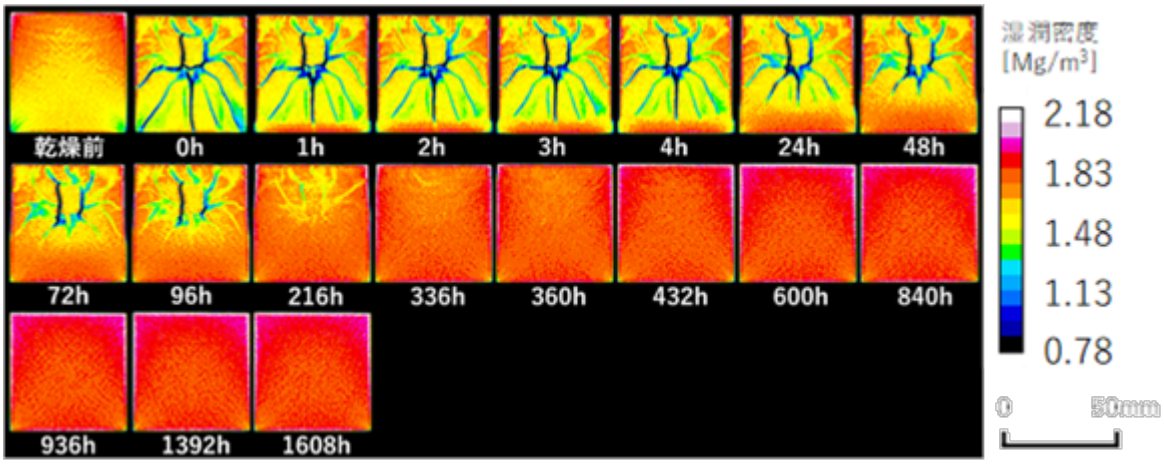
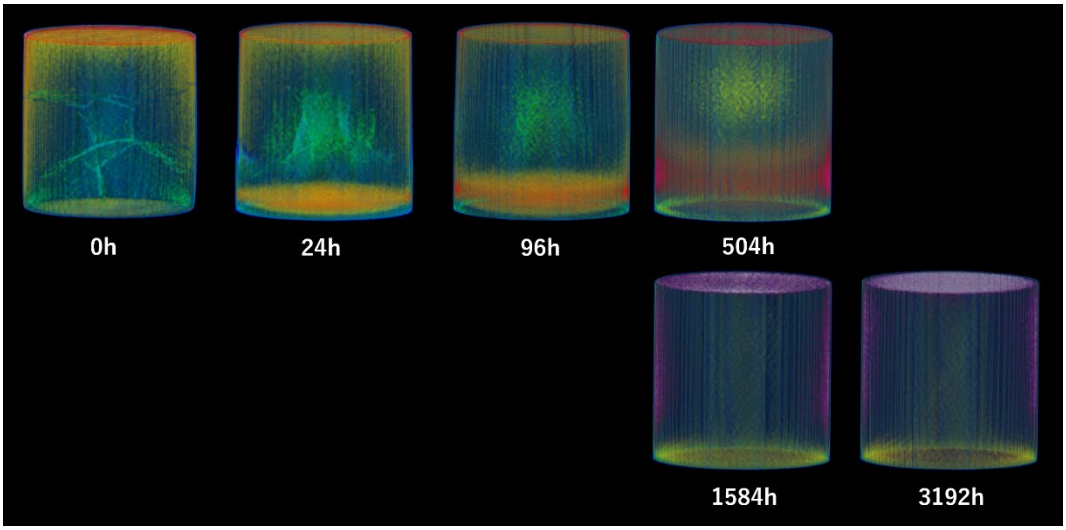
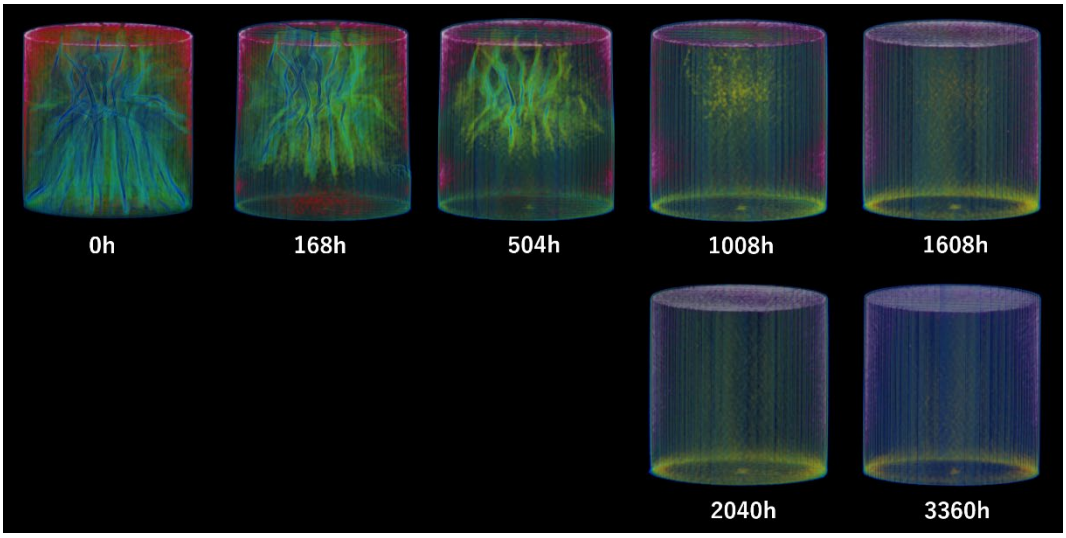


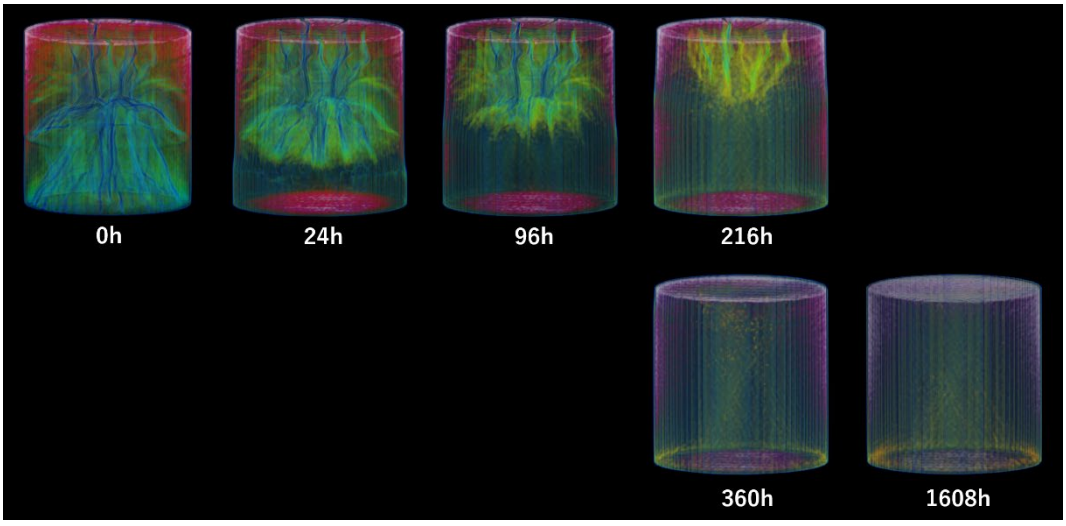
図 3.4-10 CASE2-4 の中央断面の時間ごとの X 線 CT 測定結果



(a)CASE1-2



(b)CASE2-2

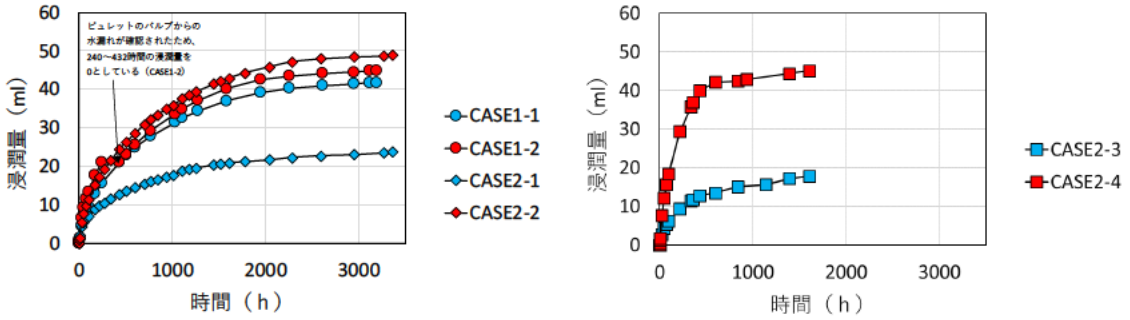


(c)CASE2-4

図 3.4-11　熱履歴によるクラックを有する供試体の内部状態

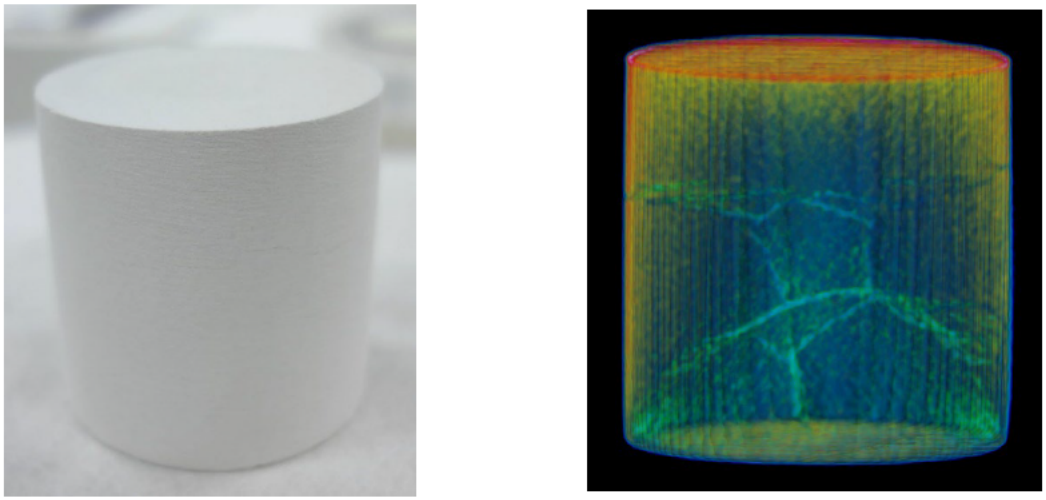
図 3.4-12 に各試験ケースにおける浸潤量の時間変化を示す。なお、CASE2-2 においては、240 時間～432 時間において、バルブからの水漏れが確認されたため、その期間の浸潤量を 0 として表示している。そのため、それ以降の期間の CASE2-2 の浸潤量は実際よりもやや少なくなっている。熱履歴を加えた場合、浸潤開始時はほぼ絶乾状態となっているため、熱履歴を加えない場合よりも浸潤量はより多くなった。CASE1-2 と CASE2-2 は、いずれも熱履歴を加えているものの、初期含水比が違いにより、CASE2-2 の方がより多くのクラックが入った状態である(図 3.4-13、図 3.4-14)。しかしながら、浸潤量の時間変化には大きな差異は認められないことから、クラックは浸潤速度には大きな影響を及ぼさないことが確認できた。

また、CASE2 の幌延地下水相当の NaCl 溶液を用いた試験では、図 3.4-12 に示すように蒸留水で行った場合と比較して、浸潤が速く進んでいることがわかった。



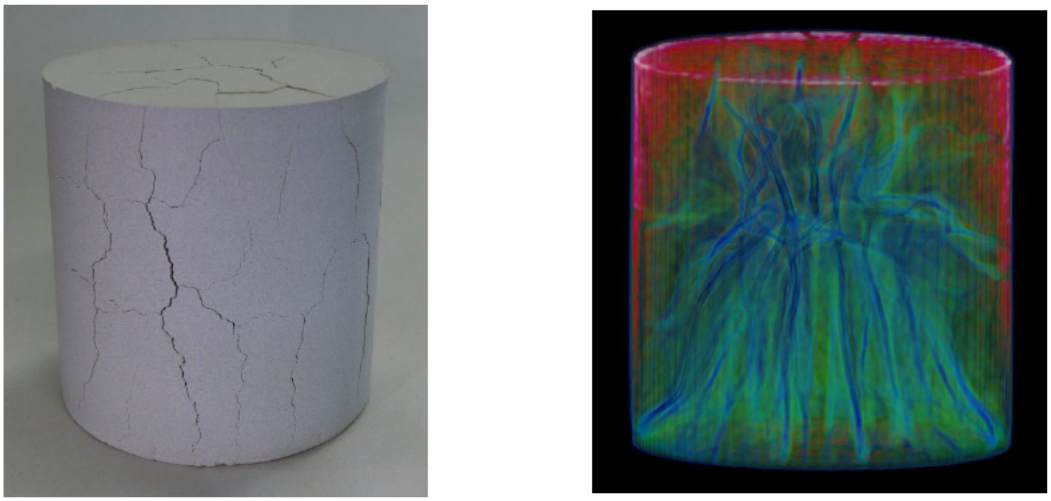
CASE1-1～CASE2-2　　(b) CASE2-3～CASE2-4

図 3.4-12　各試験ケースの浸潤量の時間変化



(a)写真　　(b)エックス線 CT 測定結果

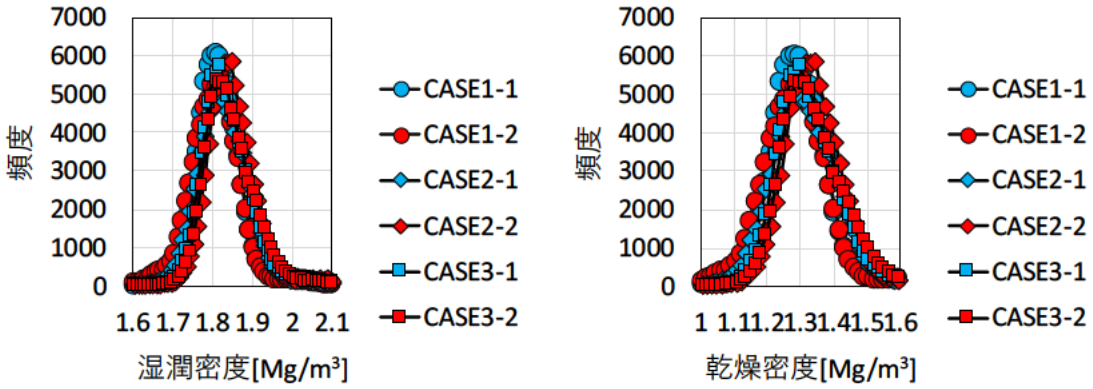
図 3.4-13　CASE1-2 の乾燥後の状態



(a)写真　　(b)エックス線 CT 測定結果

図 3.4-14　CASE2-2 の乾燥後の状態

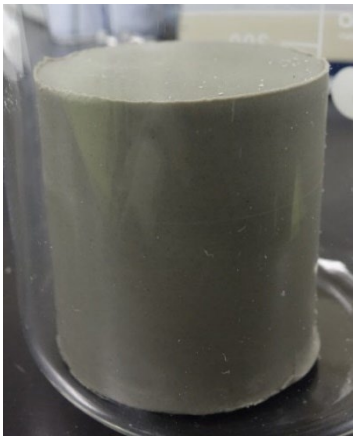
図 3.4-15 に各試験ケースにおける中心断面での試験終了時の飽和状態での湿潤密度と乾燥密度のヒストグラムを示す。頻度は、CT 値が-1000～2000 の範囲における 10 ごとの数である。なお、乾燥密度は、CT 測定により得られた湿潤密度から、飽和度を 100%と仮定することで求めた。飽和時の乾燥密度の分布には、熱履歴の有無による大きな差異は見られず、すべてのケースで概ね同様の分布を示した。



(a)湿潤密度　　(b)乾燥密度

図 3.4-15　各試験ケースの試験終了時のヒストグラム

図 3.4-16 に熱履歴を与えたケースの試験前後の写真を示す。上述のように、クラックが入った供試体は、浸潤によるベントナイトの膨張によりクラックが閉塞することがエックス線 CT 測定から確認できた。一方、図 3.4-17～図 3.4-18 に示した試験後の写真からも概ねクラックが閉塞しているものの、NaCl 溶液を用いた CASE2-4 ではクラックの痕跡のようなものがわずかに確認できた。塩水条件ではベントナイトの膨潤性が低下するため、目視でわずかに確認できる程度に、クラックがあった部分の密度が低下した状態で存在している可能性がある。

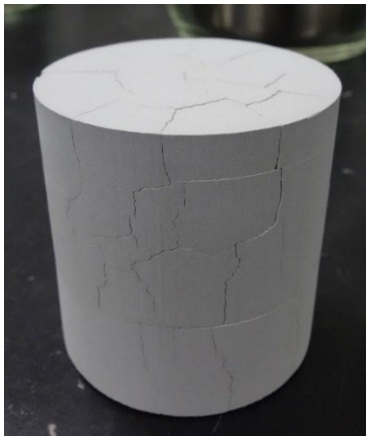


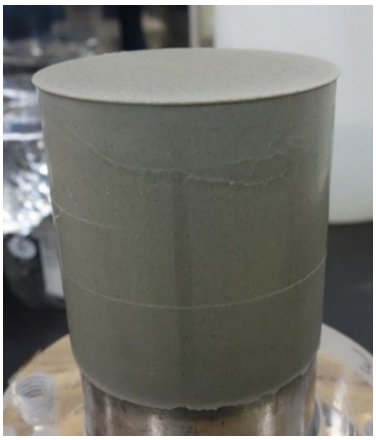
(a)試験前　　(b)試験後

図 3.4-16　CASE1-2 の試験前後の供試体の写真

(a)試験前　　(b)試験後

図 3.4-17　CASE2-2 の試験前後の供試体の写真





(a)試験前　　(b)試験後

図 3.4-18　CASE2-4 の試験前後の供試体の写真

(3) 成果と今後の課題

令和5年度の熱履歴供試体への浸潤試験を実施し、試験中にエックス線CT測定を行うことで、浸潤中の供試体の内部状態の観察を行った。その結果、熱履歴によりクラックが生じたとしても浸潤速度に大きな影響はなく、クラックが優先的な流路にはならない事が確認できた。さらに、幌延地下水相当の NaCl 溶液を用いた場合でも、ベントナイトの膨張によりクラックが閉塞している様子がエックス線 CT 測定により確認できた。一方、エックス線 CT 測定により得られた画像上ではクラックは閉塞していると考えられたが、試験終了後に回収した供試体表面を目視で確認すると、NaCl 溶液を用いた CASE2-4 では、図 3.4-18 で示したようにわずかながらクラックの痕跡のようなものが確認された。塩水条件ではベントナイトの膨潤性が低下するため、目視でわずかに確認できる程度に、クラックがあった部分の密度が低下した状態で存在している可能性が考えられた。そのため、今後は、塩水の濃度がより高い条件でも試験を実施していく予定である。

3.4.2. 熱履歴および高温条件での膨潤圧測定試験

(1) 背景と目的

これまで、過渡期における緩衝材の力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧測定試験が実施されており、室温から 90℃までの温度条件において緩衝材の膨潤特性の温度依存性に関するデータ取得が進められてきている（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター, 2022；2023）。ここでは、100℃超を含む温度条件での膨潤特性に関する知見を得るため、図 3.4-1 に示したように、人工バリア設置から緩衝材が地下水で飽和するまでの過渡期におけるニアフィールド環境を想定し、以下に示す二通りのケースについて膨潤圧測定試験を実施した。①地下水の浸潤により水分が上昇しながら高温状態（100℃超を含む）になるケースとして、100℃以上の温度条件下で水の浸潤によって発生する膨潤圧を測定した。②高温環境（100℃超を含む）によって初期の状態より水分量が低下し、その後、地下水が浸潤するケースでは、3.4.1 節にあるように、乾燥によってクラックが生じていることから、緩衝材に期待される膨潤機能の低下が懸念される。そこで、熱履歴として 100℃以上の温度で乾燥させた供試体を対象として水の浸潤にともなう膨潤圧を測定した。そして、高温条件下および熱履歴が緩衝材の膨潤特性に及ぼす影響について把握した。

(2) 実施内容

① 膨潤圧測定試験概要

(a)caseA：100℃を超える高温条件での膨潤圧測定試験

図 3.4-1 中の①を想定した試験として、110℃、125℃及び 140℃の温度条件において、圧縮成形したベントナイト（以下、供試体という）の体積を拘束した状態で水を浸潤させた際に発生する膨潤圧を測定した。供試体は、クニミネ工業製の Na 型ベントナイトのクニゲル V1、3 号ケイ砂及び 5 号ケイ砂を、乾燥重量比 0.70：0.15：0.15 で混合し、これを、直径 20 mm、高さ 10 mm、乾燥密度 1.6Mg/m^3 に圧縮成形して作製した。供試体作製時におけるベントナイトの含水比は 7.8%である。

試験に用いた装置の概略を図 3.4-19 に示す。試験容器内の供試体に浸潤水を供給し、供試体上部に設置したロードセルによって鉛直方向に発生する膨潤圧を計測した。ロードセルには、東京測器研究所製（型式名 CLR-5KNAH、定格容量 5kN、許容温度範囲 -10 °C から 160 °C）を用いた。本試験装置は、ステンレス鋼材で作られており、発生する膨潤圧に対して十分な剛性を有している。そして、150℃までの温度で制御可能な恒温槽内に設置し、試験容器は、浸潤水を加圧して供試体に供給することができる給水タンクと接続した。

供試体への浸潤水の供給方法については、100℃を超える高温条件下で供試体を完全飽和させるための手法として、供試体の上下二方向から浸潤水を加圧して供給し、供給圧に差圧も設けることで供試体内部に間隙空気が残留しないようにした。そして、試験容器内の浸潤水を液体として保つために、各試験温度において蒸気圧曲線から求められる圧力よりも供試体上部では 0.05MPa 大きく、供試体下部では 0.15MPa 大きな圧力で供給を行った。浸潤水には、脱気した蒸留水を用い、試験容器内の空気を真空ポンプで排除した後に供試体への供給を開始した。

(b) caseB：100℃を超える熱履歴を与えた供試体の膨潤圧測定試験

図 3.4-1 中の②を想定した試験として、100℃を超える高温条件によって乾燥させた絶乾状態の供試体を対象として、25℃の温度条件下で水を浸潤させて膨潤圧を測定した。供試体の乾燥には恒温槽を使用し、乾燥時間は 48 時間とした。供試体を乾燥させる温度は 110℃、125℃及び 140℃とし、乾燥温度による膨潤圧への影響の有無を確認した。供試体仕様は、上記の caseA と

同様であるが、乾燥させる前の供試体の水分量の違いによる膨潤圧への影響を把握するため、供試体作製時のベントナイトの含水比が 7.8%と 22%程度の二種類とした。また、シリカゲル乾燥剤を用いて乾燥させた供試体に対して試験を実施し、膨潤圧への影響が熱によるものなのかどうかを確認した。この手法で乾燥させた供試体の含水比は、乾燥前後の質量変化から 0.3%程度であった。試験装置は、図 3.4-19 に示したものを使用した。供試体への浸潤水の供給は、0.05MPa の圧力で供試体下部から行い、供試体上部はバルブを閉じて水の出入がない状態とした。本試験ケースにおいても、浸潤水は脱気した蒸留水であり、試験容器内の空気を真空ポンプで排除した後に供試体への供給を開始した。

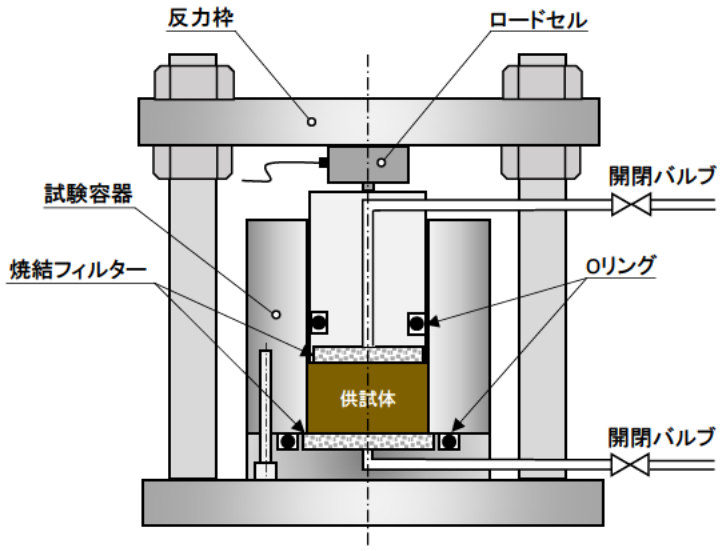


図 3.4-19　緩衝材の膨潤圧測定に用いた試験装置の概略図

以上の二つの方法によって、100℃を超える高温環境を想定した条件下での膨潤特性を把握し、これまでに得られている膨潤圧の測定結果との比較を通じて、緩衝材の膨潤圧に及ぼす熱影響について把握した。各ケースにおける試験条件を表 3.4-3 に示す。

表 3.4-3　膨潤圧測定試験条件

	供試体作製時のベントナイトの含水比（%）	供試体の乾燥方法	膨潤圧の測定温度
caseA1	7.8	なし	110℃
caseA2		なし	125℃
caseA3		なし	140℃
caseB1		110℃の恒温槽で48時間乾燥	25℃
caseB2		125℃の恒温槽で48時間乾燥	
caseB3		140℃の恒温槽で48時間乾燥	
caseB4	22.9	110℃の恒温槽で48時間乾燥	
caseB5	21.7	140℃の恒温槽で48時間乾燥	
caseB6	7.8	シリカゲル乾燥剤を用いて乾燥	

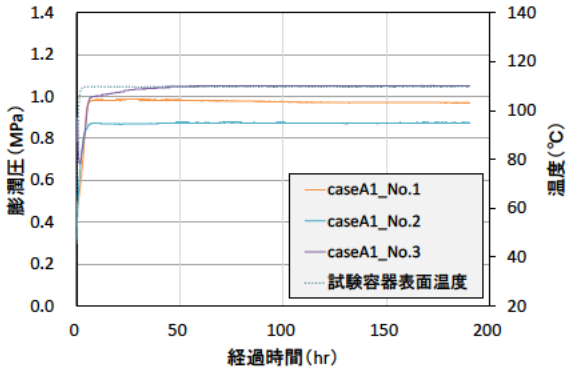
② 試験結果

caseA の膨潤圧の時間変化を図 3.4-20(a)～(c)に示す。試験期間は、膨潤圧が定常状態となるまでのおおよそ一週間である。caseA1 は、恒温槽の設定温度を 110℃とした条件下で供試体に水を浸潤させている。その結果、約 50 時間後に膨潤圧は 0.92～1.10MPa で定常状態となった（図 3.4-20(a)）。なお、膨潤圧は、ロードセルによって計測された値から、供試体上部に与えた浸潤水の供給圧を差し引いたものである。これは、膨潤圧に供給圧である間隙水圧を足し合わせたものが全応力として計測されるとした実験結果に基づくものであり（鈴木・藤田，1999）、地下水で飽和した岩盤の有効応力の考え方に従うものである。試験終了後、供試体の寸法及び含水比を測定し、供試体の密度及び間隙水飽和度を求めた。そして、供試体が浸潤水で飽和していることを確認した（表 3.4-4 参照）。試験数 3 での膨潤圧の差異は、供試体作製時に生じる密度のバラツキが主な原因であると考えられる（表 3.4-4 参照）。caseA2 は、恒温槽の設定温度を 125℃とした条件下で供試体に水を浸潤させており、約 130 時間後に膨潤圧は 1.06～1.13MPa で定常状態となった（図 3.4- 20(b)）。caseA3 は、恒温槽の設定温度を 140℃とした場合であり、約 170 時間後に膨潤圧は 0.95～1.12MPa で定常状態となっている（図 3.4- 20(c)）。これらについても試験終了後に供試体の飽和を確認した（表 3.4-4 参照）。

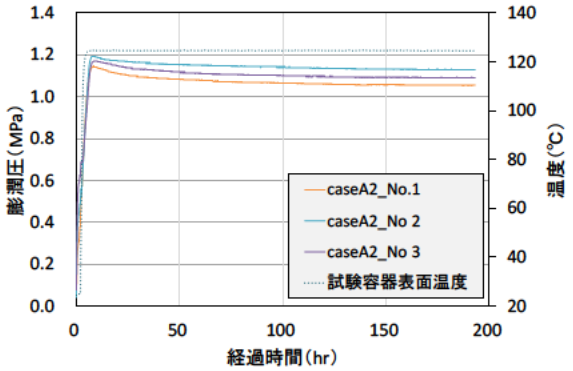
本試験で取得した 110℃、125℃及び 140℃の温度条件下での膨潤圧について、これまでに得られている 25℃から 90℃の条件での測定結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進・資金管理センター，2022）と合わせて、膨潤圧と温度の関係で整理すると図 3.4-22 のようになる。温度については、供試体の温度を直接測定していないため、供試体を充填した試験容器の表面温度としている。これより、100℃を超える温度条件を含めて、温度が高いほど膨潤圧が大きくなる傾向にあることが分かった。図中の直線は、温度と膨潤圧との関係を線形近似したものであり、25℃から 140℃の範囲においてケイ砂 30wt%混合ベントナイトの乾燥密度が 1.6Mg/m³ の場合では次式のようになる。

$$P_s = 0.0044T + 0.4752 \qquad (3.4\text{-}2)$$

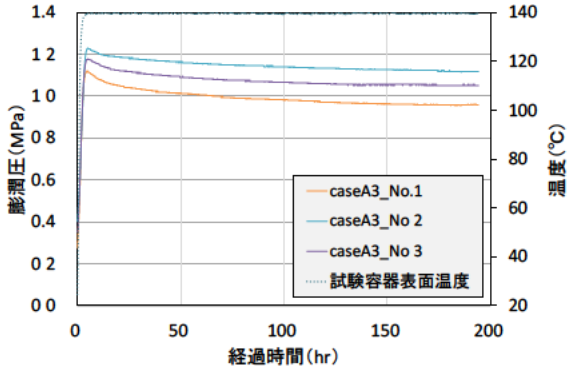
ここで、P_sは定常状態における膨潤圧（MPa）、Tは温度（℃）である。



（a）caseA1



（b）caseA2



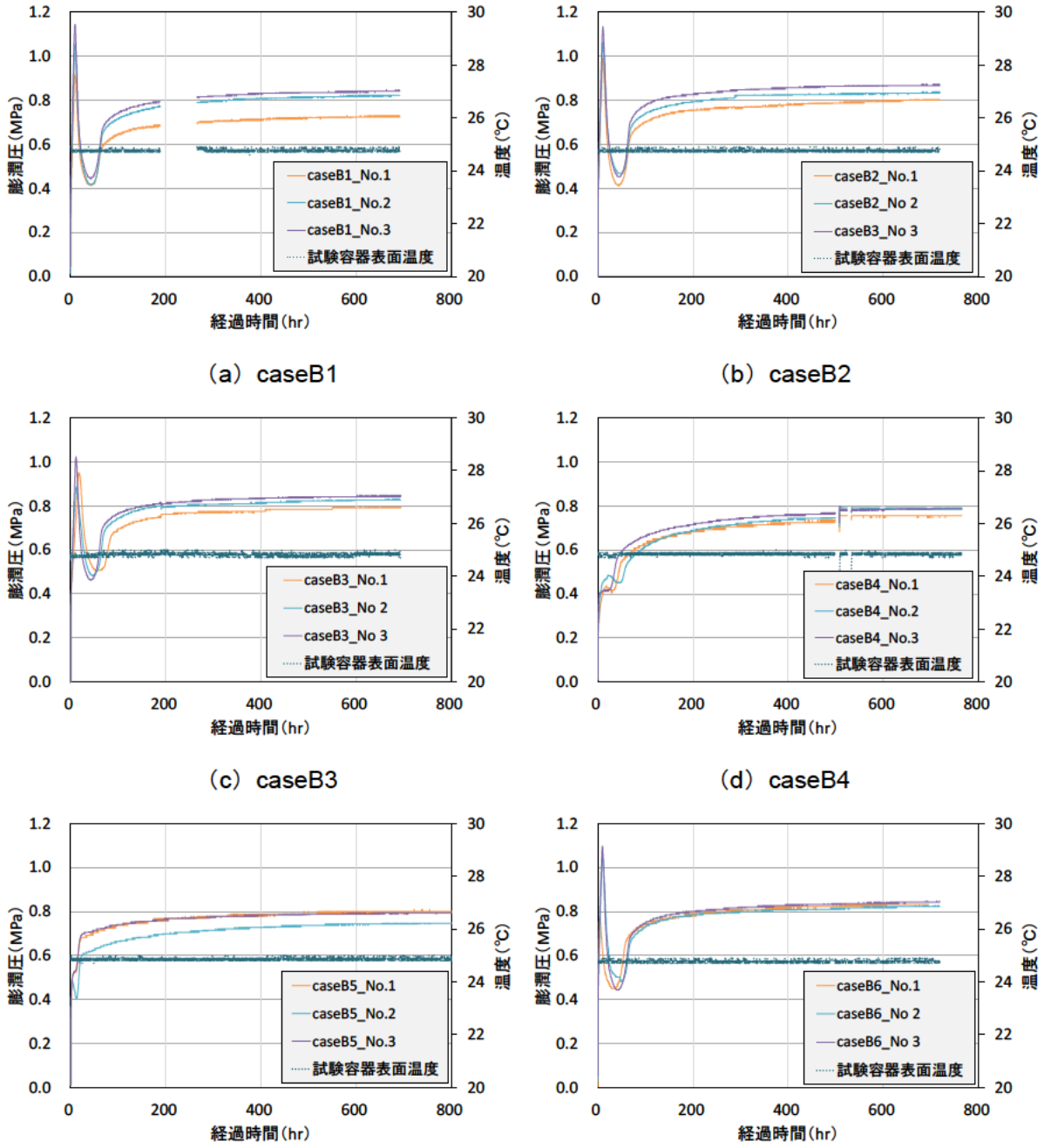
（c）caseA3

図 3.4-20　100℃を超える高温条件での膨潤圧測定試験結果

caseB の場合の膨潤圧の時間変化を図 3.4-21(a)～(f)に示す。試験期間は、膨潤圧が定常状態となるまでのおおよそ一ヵ月であり、図中の計測データの欠損や温度の低下は停電の影響によるものである。なお、膨潤圧は、ロードセルによって計測された値から、浸潤水の供給圧の 0.05MPa を差し引いたものである。caseB1 は、110℃の条件で炉乾燥させた絶乾状態の供試体に水を浸潤させた場合の測定結果である（図 3.4-21 (a)）。浸潤開始直後、膨潤圧は一時的に 1.1MPa に上昇した後に 0.72～0.84MPa で定常状態となった。試験終了後に供試体の水分量を測定した結果、供試体が浸潤水で飽和していることを確認した（表 3.4-4 参照）。caseB2（図 3.4-21 (b)）は 125℃で、caseB3（図 3.4-21 (c)）は 140℃でそれぞれ炉乾燥させた場合であり、定常状態での膨潤圧は、caseB1～caseB3 で同様な値となった。なお、これらの供試体は、乾燥によるクラックの発生など外観の変化は確認できなかった。caseB4（図 3.4-21 (d)）及び caseB5（図 3.4-21 (e)）は、含水比が 22%程度の水分量の多いベントナイトを用いて作製した供試体を乾燥させた後に水を浸潤させた場合である。その結果、caseB1～caseB3 で見られたような浸潤開始直後の膨潤圧のピークが観察されなかったが、定常状態の膨潤圧は 0.8MPa 程度となっており、これは、caseB1～caseB3 の場合と同程度であった。なお、水分量の多いベントナイトを用いて作製した供試体を炉乾燥させた場合は、前章で示したように乾燥収縮に伴うクラックが確認された。caseB6 は、シリカゲル乾燥剤を用いて供試体を乾燥させた場合である（図 3.4-21 (f)）。本試験条件においても定常状態での膨潤圧は 0.8MPa 程度であり、これは高温で乾燥させた caseB1～caseB5 の場合と同程度であった。このことから、供試体を乾燥させるための熱履歴が膨潤圧に及ぼす影響は小さいことが分かった。

以上、図 3.4-1 中の②を想定した試験として、供試体を乾燥させる温度が 140℃以下の場合、乾燥温度及び乾燥させる前の供試体の水分状態が膨潤圧に及ぼす影響が小さいことを確認した。

本試験で得られた絶乾状態とした供試体に蒸留水を浸潤させた場合の膨潤圧について、これまでに得られている間隙水飽和度が 0.3 の供試体に 25℃の温度条件で蒸留水を浸潤させた場合の測定結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2022）と合わせて、供試体の間隙水飽和度との関係で整理すると図 3.4-23 のようになる。これより、供試体が乾燥した後に水が浸潤することで発生する膨潤圧が大きくなる傾向にあることが分かった。



（a）caseB1　　（b）caseB2

（c）caseB3　　（d）caseB4

（e）caseB5　　（f）caseB6

図 3.4-21　乾燥させた供試体の膨潤圧測定試験結果

表 3.4-4　膨潤圧測定試験結果

	試験終了時の供試体の乾燥密度（Mg/m^3）	試験終了時の供試体の間隙水飽和度（%）*1	定常状態での膨潤圧（MPa）
caseA1	1.57	101.04	1.03
	1.52	101.92	0.92
	1.57	101.24	1.10
caseA2	1.58	101.99	1.06
	1.57	100.93	1.13
	1.57	100.26	1.09
caseA3	1.56	101.91	0.95
	1.57	102.91	1.12
	1.58	101.08	1.05
caseB1	1.55	98.65	0.72
	1.56	99.80	0.82
	1.58	100.21	0.84
caseB2	1.57	100.96	0.80
	1.56	100.07	0.83
	1.58	101.35	0.87
caseB3	1.57	101.84	0.79
	1.58	100.13	0.83
	1.58	99.42	0.85
caseB4	1.56	100.00	0.76
	1.57	99.38	0.79
	1.57	100.42	0.79
caseB5	1.57	100.44	0.80
	1.57	100.02	0.75
	1.57	100.06	0.79
caseB6	1.56	99.32	0.83
	1.57	99.36	0.82
	1.56	100.18	0.84

*1 ベントナイト及びケイ砂の真密度をそれぞれ 2.70Mg/m^3 と 2.64 Mg/m^3 として算出

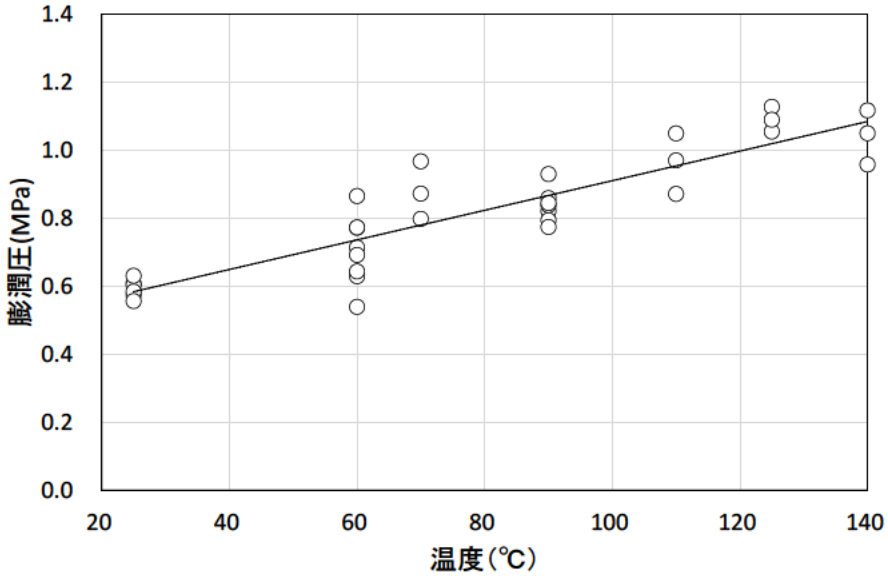


図 3.4-22　温度と膨潤圧の関係

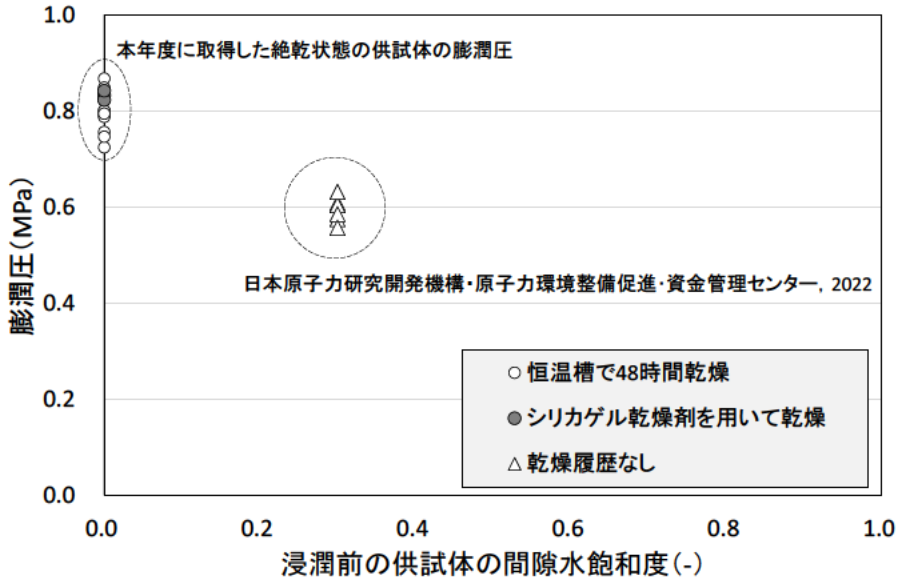


図 3.4-23　浸潤前の供試体の間隙水飽和度と膨潤圧の関係

(3)　成果と今後の課題

令和 5 年度は、100℃超を含む温度条件においてニアフィールドで生じる現象の理解を進めるための一環として、100℃を超えるニアフィールド環境を想定した条件において緩衝材の膨潤圧を測定した。100℃を超える高温条件下での膨潤圧測定試験では、110℃、125℃及び 140℃での膨潤圧を取得した。そして、これまでに得られている 25℃から 90℃の温度条件下での試験結果と合わせて整理を行い、100℃を超える温度環境を含めて、温度が高いほど膨潤圧が大きくなる傾向にあることを確認した。また、100℃を超える熱履歴を与えた供試体の膨潤圧測定試験では、乾燥収縮によって供試体にクラックが発生した場合でも、水が浸潤することで膨潤圧が発生し、緩衝材に求められる自己修復機能を有していることを確認した。そして、供試体を乾燥させるた

めの温度が 110℃から 140℃の範囲において、乾燥温度及び乾燥させる前の供試体の水分状態が膨潤圧に及ぼす影響が小さいことを確認した。さらに、供試体を乾燥させ絶乾状態とした後に水を浸潤させた場合の膨潤圧は、このような乾燥過程を持たない場合に比べて 30%程度大きくことが分かった。既往の研究では、水を浸潤させる前の供試体の水分量が少ないほど、発生する膨潤圧は大きくなるとした実験結果が得られており、これは、飽和に至るまでの間において、ベントナイト層間の底面間隔の変化量が大きくなるためと推察されている（柴田ほか，1992）。本試験において、絶乾状態の供試体の膨潤圧が大きくなる要因としては、このような底面間隔の変化量が大きくなることに起因しているものと考えられる。

今後は、3.3 章で示した幌延地下施設における 100℃超での原位置試験で用いられている緩衝材仕様や、熱履歴として乾燥収縮によってクラックが生じた供試体に対して塩水を浸潤させる試験を実施し、高温条件下および熱履歴が緩衝材の膨潤特性に及ぼす影響に関するデータを蓄積する予定である。

3.4.3. 熱履歴供試体への透水試験

(1) 背景と目的

3.4.1 項の熱履歴供試体への浸潤試験で示したように、ベントナイトを締固めた供試体に 100 ℃超の熱履歴が与えられると供試体の乾燥に伴う収縮によりクラックが発生することが確認されている。3.4.1 項の熱履歴供試体への浸潤試験で示したように、試験溶液が蒸留水の場合、浸潤に伴いクラックは閉塞していることから、試験溶液が蒸留水の場合、熱履歴により供試体に生じたクラックが飽和後の緩衝材の物性値に与える影響は少ないと考えられる。一方、試験溶液が海水などのイオン強度の高い溶液の場合、ベントナイトの膨潤性が低下することが知られており（菊池・棚井, 2004）、供試体の乾燥により生じたクラックがベントナイトの膨潤により閉塞しなかったり、クラックが閉塞していても閉塞部の密度が低かったりした場合、クラックの閉塞部が選択的な移行経路となり透水性が高くなることが考えられる。

このため、熱履歴を付与することにより生じた供試体のクラックの有無やクラックの大きさが供試体の透水特性に与える影響を評価するために、乾燥密度 1.6 Mg/m^3 に締固めた圧縮ベントナイト試料及び、同試料に熱履歴を付与して作製したクラックを有する供試体を対象に、蒸留水に加えて複数の濃度の NaCl 水溶液を用いて透水試験を実施した。

(2) 実施内容

① 試験条件および試験方法

表 3.4-5 に熱履歴を与えない場合の透水試験条件、表 3.4-6 に熱履歴を与えた場合の透水試験条件を示す。供試体は全て乾燥密度 1.6 Mg/m^3、ケイ砂混合率 30 %の圧縮ベントナイト試料であり、熱履歴を付与しないケースでは、自然含水比（5.5 %）、高含水比（16.3 %）、熱履歴を付与するケースでは、高含水比（16.3%）に加えて高含水比試料を蒸留水で飽和させた試料を用いた。試験溶液には基準となる蒸留水に加えて、幌延地下水（HDB-6 450m）相当として 0.26 mol/dm3、海水相当として 0.70 mol/dm^3 の NaCl 水溶液を用いた。それぞれのケースにおける N 数は、含水比が 5.5 %のケース及び試験溶液が蒸留水のケースは 1、試験溶液が NaCl 水溶液の場合、0.26 mol/dm^3 ケースは 2、0.70 mol/dm^3 のケースは 3 とした。

表 3.4-5　透水試験条件（140 ℃熱履歴無し）

試料	ベントナイト（クニゲルV1）					
ケイ砂混合率	30 %					
乾燥密度(Mg/m^3)	1.6					
供試体寸法(mm)	φ50×h10					
140℃熱履歴の付与	無し					
試験室温度（℃）	22					
供試体の含水比(%)	5.5(飽和度0.22)			16.3(飽和度0.65)		
試験溶液のNaCl濃度(mol/dm^3)	0	0.26	0.70	0	0.26	0.70
通水圧(kPa)	300	200	200	300	200	200
N数	1	1	1	1	2	3

表 3.4-6　透水試験条件（140 ℃熱履歴有り）

試料	ベントナイト（クニゲルV1）					
ケイ砂混合率	30 %					
乾燥密度(Mg/m³)	1.6					
供試体寸法(mm)	φ50×h10					
140℃熱履歴の付与	有り					
試験室温度（℃）	22					
熱履歴付与前の供試体の含水比(%)	16.3(飽和度0.65)			25.2（飽和度1.00）		
通水圧(kPa)	300	200	200	300	200	200
試験溶液のNaCl濃度(mol/dm³)	0	0.26	0.70	0	0.26	0.70
N数	1	2	3	1	2	3

供試体は、クニミネ工業製の Na 型ベントナイトであるクニゲル V1、3 号ケイ砂および 5 号ケイ砂を、乾燥重量比 0.7 : 0.15 : 0.15 で混合したものを材料とした。この材料を、試験セル内で、乾燥密度 1.6Mg/m³ となるように汎用の圧縮試験機で 1 方向から圧縮成形することにより作製した。

供試体への熱履歴の付与は、3.4.1 項の熱履歴供試体への浸潤試験と同様に、140 ℃で 48 時間以上とした。含水比が 16.3 %の供試体は、試験セル内で圧縮成形した後供試体を内包した試験セルごと、140 ℃に設定した恒温槽で 48 時間以上の熱履歴を付与した。含水比 25.2 %（飽和）の供試体は、図 3.4-24 に示すように、供試体を内包した試験セルを透水試験用のカラムに設置し、試験カラムに接続したビュレット内の蒸留水を浸潤させることにより供試体を飽和させた。ビュレット内の水量の変化から給水量を計測し、給水量がほぼ変化しなくなった時点（約 20 日）で飽和と判断した。飽和と判断した後、試験カラムを解体し供試体を内包した試験セルを 140 ℃に設定した恒温槽で 48 時間以上の熱履歴を付与した。

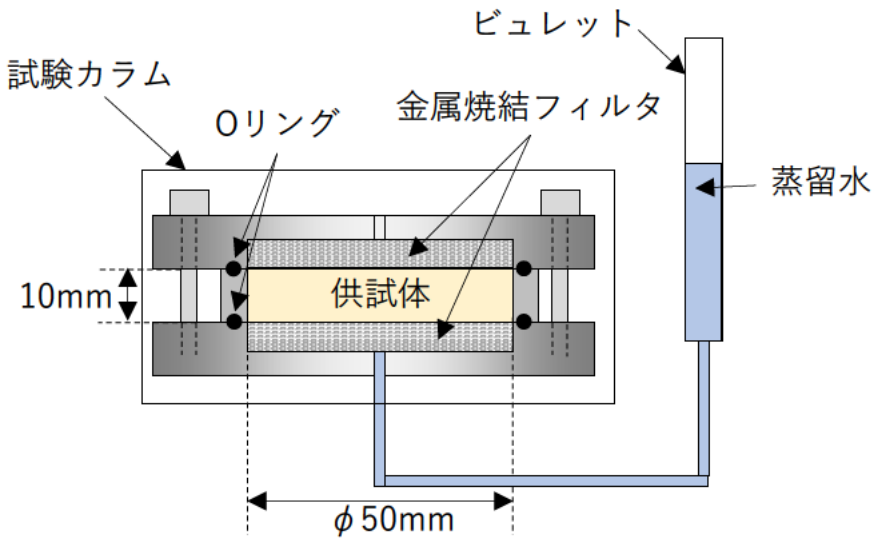


図 3.4-24　透水試験装置概略（飽和過程）

透水試験は定水位法により実施した。図 3.4-25 に示すように、エアーコンプレッサーの空気圧を利用して加圧された試験溶液を試験カラムに通水し、排水量を電子天秤で計測した。試験室内の室温は空調によりコントロールしており、試験期間を通して 22 ℃±1 ℃を維持した。

供試体に試験溶液を通水する際に、熱履歴を付与した供試体にはクラックが発生しているため、初期段階から通水圧を掛けるとクラックが閉塞せずに選択的な通水経路となる恐れがある。このため、5 日間程度通水圧を掛けずに給水させることでクラックを閉塞させた後に、既定の通水圧まで段階的に通水圧を上昇させた。なお、透水試験を実施する際に通水圧が高いと供試体に選択的な移行経路が生じて透水量が増大することが報告されている（黒澤ほか, 2003）。このため、通水圧は圧縮ベントナイト試料を対象とした膨潤圧測定試験結果（菊池・棚井, 2004）を参考にして、膨潤圧を超えない範囲で設定した。

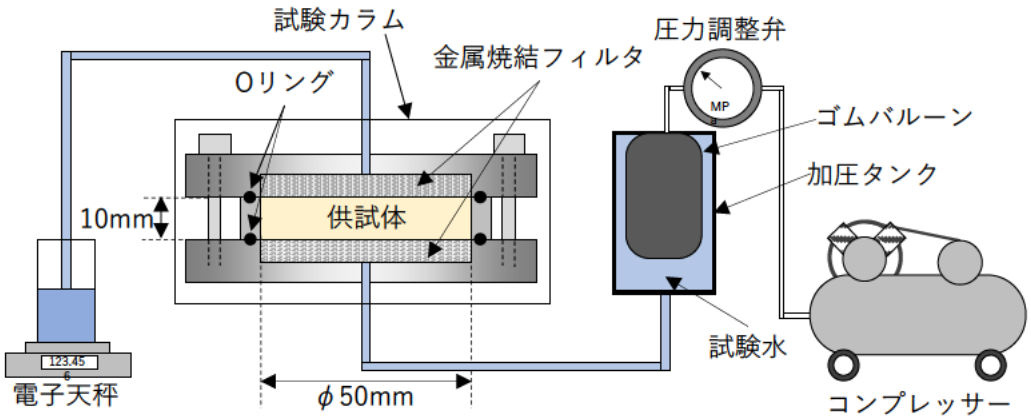
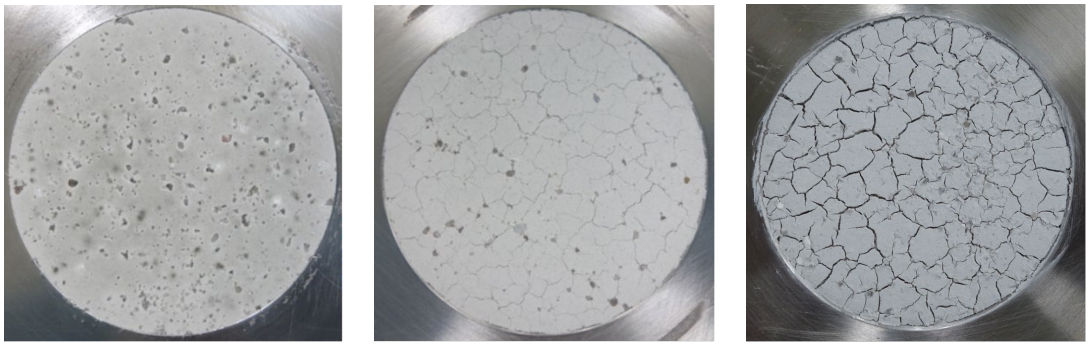


図 3.4-25　透水試験装置概略（通水過程）

②試験結果

図 3.4-26 に 140 ℃熱履歴付与後の供試体の外観の一例を示す。熱履歴を付与することで、供試体の乾燥に伴いクラックが発生している。供試体に発生したクラックは、熱履歴付与前の供試体の含水比が高いほど幅が広く、クラックによる間隙が多い状態となっている。なお、供試体の収縮により試験セルと供試体の間にも隙間は生じているが、飽和試料に熱履歴を付与したケースでも試験セルから供試体が外れるまでには至っていない。



a）熱履歴無し
（含水比16.3% 、飽和度0.65 ）

b）140℃熱履歴
（含水比16.3%、飽和度0.65）

c）140℃熱履歴
（含水比25.2%、飽和度1.00）

図 3.4-26　140℃熱履歴の付与による供試体（φ50mm）の変化

一般に土壌中の水の動きは Darcy 則に従うとされており、単位時間当たりの透過液流量は次式で表される。

ここで、Q は単位時間当たりの透過液流量(m³/s)、k は透水係数(m/s)、 Aは供試体断面積(m²) i は動水勾配(-)を表す。

$$Q = k \cdot A \cdot i \qquad (3.4\text{-}3)$$

表 3.4-5、表 3.4-6 に示す試験ケースに対してそれぞれ透水試験を実施し、式 3.4-3 に基づき通水圧と透過液流量の値から透水係数を算出した。表 3.4-7 に各試験ケースでの透水係数、図 3.4-27 に試験溶液の NaCl 濃度の関係を示す。

表 3.4-7　透水係数の算出結果

NaCl濃度(mol/dm³)	0	0.26		0.70		
16.3%熱履歴無し	4.55×10^{-13}	1.60×10^{-12}	1.60×10^{-12}	1.22×10^{-11}	1.20×10^{-11}	1.30×10^{-11}
16.3%熱履歴140℃	4.24×10^{-13}	2.23×10^{-12}	2.67×10^{-12}	2.21×10^{-11}	2.99×10^{-11}	2.77×10^{-11}
25.2%(飽和) 熱履歴140℃	2.91×10^{-13}	1.85×10^{-12}	1.53×10^{-12}	1.47×10^{-11}	1.65×10^{-11}	1.22×10^{-11}
5.5%熱履歴無し	4.58×10^{-13}	2.73×10^{-12}	-	3.00×10^{-11}	-	-

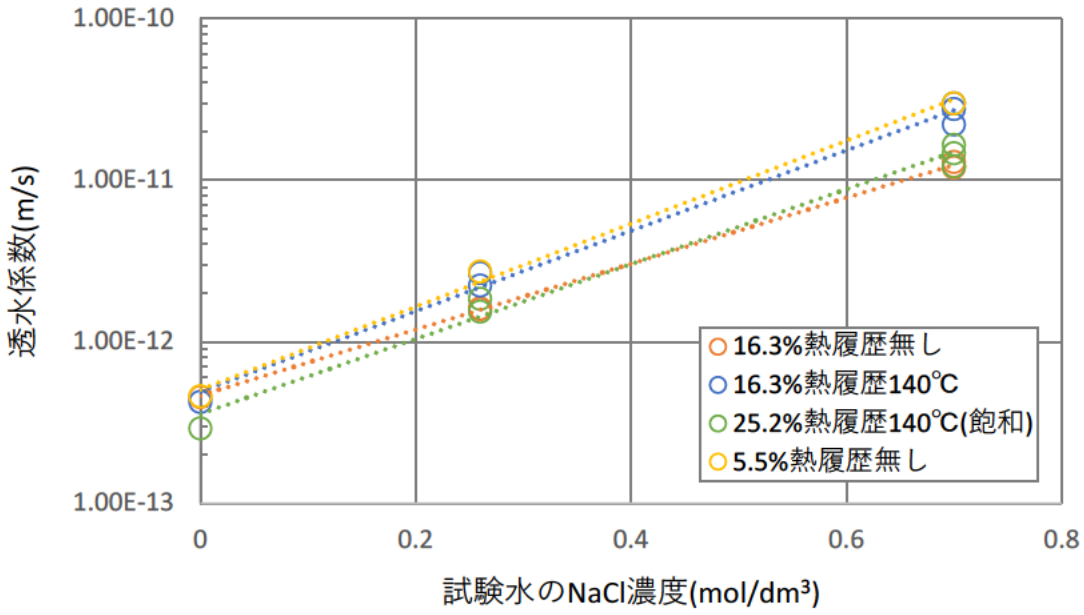


図 3.4-27　透水係数と試験溶液の NaCl 濃度の関係

試験溶液が蒸留水の場合、各試験ケースでの透水係数はほぼ一致していることから、熱履歴の付与により供試体に発生したクラックは供試体の透水性に影響を与えていないと言える。

一方、試験溶液が NaCl 水溶液の場合、試験溶液の NaCl 濃度が高くなるに従い透水係数が大きくなる傾向は同じであるが、試験ケースごとに透水係数に違いが生じている。熱履歴を付与していない含水比 5.5 %と 16.3 %を比較すると含水比が 16.3 %のケースの透水係数が低い結果となっている。本試験結果のように圧縮ベントナイト試料に NaCl 水溶液等のイオン強度の高い水溶液を通水した場合透水係数が高くなることが知られているが（菊池・棚井, 2004）、塩水を通水する前に蒸留水で飽和させた場合、その後塩水を通水しても透水係数が低い状態を維持することが知られており、プレハイドレーション（本島ほか, 2010）と呼ばれている。このことから、本試験結果において含水比が高いケースの透水係数が低くなる要因の一つとして、供試体の含水比が高いことにより、プレハイドレーションと同様の効果が起きている可能性が考えられる。

供試体作製時の含水比が同一であるが熱履歴の有無という違いがある供試体を比較した場合、熱履歴を付与したケースの透水係数が大きくなっており、熱履歴を付与した際に発生したクラックが影響している可能性がある。ただし、同じ種類のベントナイトを対象とした透水係数の値は１オーダー程度のばらつきを有していることが知られており、同じ報告者が取得した場合であっても数倍程度のばらつきは排除できない結果となっている（棚井ほか, 2010）。このため、熱履歴の付与により生じたクラックによって透水係数が影響を受けたとしても、その影響の程度は既往の透水試験結果のばらつきの範囲内と考えられる。また、本試験結果内での比較でも、熱履歴の付与により生じたクラックによる透水係数の変化は、初期含水比の違いによる透水係数の変化よりも小さいことから、本試験条件で供試体に発生したクラックが透水係数に与える影響は少ないと考えられる。また、熱履歴を付与していない供試体は、同じ条件で測定した透水係数のばらつきが小さいのに対して、熱履歴を付与した場合、透水係数のばらつきが大きくなる傾向が見られるが、これは熱履歴を付与した際に発生したクラックの入り方の違いによるものであると考えられる。

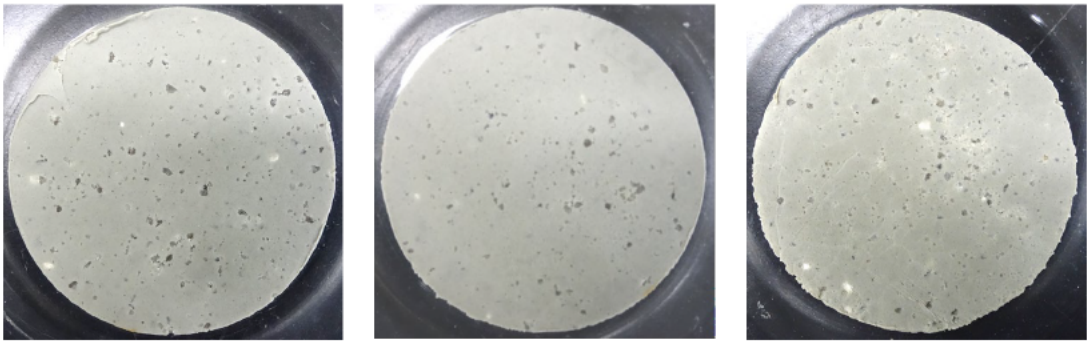
供試体に熱履歴を付与する前の含水比が異なるケースを比較した場合、含水比 16.3 %のケース

よりも、クラックの幅が大きい含水比 25.2 %のケースの透水係数が低い結果となった。試験数は限られているが、試験溶液の NaCl 濃度が 0.26 mol/dm³ の場合と 0.70 mol/dm³ の場合で同様の傾向を示していることから試験結果のばらつきが原因ではないと考えられる。クラックの幅が大きいケースの透水係数が低くなるという結果となったが、この原因として熱履歴を付与する前に飽和させたことによるプレハイドレーションと同等の効果が、熱履歴を付与した後にも残っている可能性が考えられるが、そのメカニズムは現時点では不明である。

図 3.4-28 に 0.26 mol/dm³ の NaCl 水溶液（幌延地下水相当）を通水した場合、図 3.4-29 に 0.70 mol/dm³ の NaCl 水溶液（海水相当）を通水した場合の透水試験後の供試体を示す。どちらのケースでも透水試験後にクラックは完全に閉塞していることが確認できる。比較的クラックの幅が狭い含水比 16.3 %、140 ℃熱履歴供試体の場合、目視でクラックは確認できないが、比較的クラックの幅が大きい含水比 25.2 %、140 ℃熱履歴供試体の場合、海水相当の試験溶液では、飽和後試料に若干のクラックの痕跡が見られる。しかし、透水係数で比較した場合、熱履歴を付与していない場合とほぼ同等の透水係数となっていることから、本試験で生じたクラックの幅では、クラックの閉塞部が選択的な流路とはなっていないと考えられる。ただし、クラックの形状や大きさは供試体のスケールに依存すると考えられることから、より大きなスケールでの試験を実施した場合には、クラックの影響が顕在化することも考えられる。

a）熱履歴無し（含水比16.3% 、飽和度0.65 ）　b）140℃熱履歴（含水比16.3%、飽和度0.65）　c）140℃熱履歴（含水比25.2%、飽和度1.00）

図 3.4-28　透水試験後の供試体（φ50mm）の外観（幌延地下水相当）



a）熱履歴無し（含水比16.3% 、飽和度0.65 ）　b）140℃熱履歴（含水比16.3%、飽和度0.65）　c）140℃熱履歴（含水比25.2%、飽和度1.00）

図 3.4-29　透水試験後の供試体（φ50mm）の外観（海水相当）

(3) 成果と今後の課題

令和 5 年度は、熱履歴により生じたクラックが緩衝材の透水性に与える影響を評価するため、熱履歴を付与した供試体を含む複数の供試体を対象に、蒸留水及び異なる濃度の NaCl 水溶液を用いた透水試験を実施した。その結果、試験ケース毎の透水係数は 2 倍程度であり、既往の報告のばらつきの範囲に収まっていることから、熱履歴を付与することにより生じたクラックが透水係数に与える影響は少ないことが確認できた。この結果は、透水試験後の供試体のクラックが閉塞していることと整合的である。ただし、ベントナイトの膨潤性が低下する海水相当の試験溶液を用いたケースでは、透水試験後の供試体のクラックは閉塞しているが、クラックの痕跡が見られたことから、より高い NaCl 水溶液を用いた場合、クラックが完全に閉塞しない可能性が考えられる。また、熱履歴を付与することにより生じるクラックの大きさは供試体のスケールに依存すると考えられることから、実際の処分環境では、より大きなクラックが生じることが想定される。

そのため、今後はより大きなクラックや間隙を有する供試体を対象に、幌延地下水相当や海水相当の試験溶液に加えてより高い濃度の NaCl 水溶液を用いた透水試験を実施することで、供試体の透水性に影響を与えないクラックの幅や試験溶液の NaCl 濃度の範囲を検証していく予定である。

3.4.4. 高温条件での変形試験

(1) 背景と目的

これまで、過渡期の緩衝材の力学特性の温度依存性を考慮できる力学モデルの構築に向け、温度を制御した膨潤圧測定試験と圧密試験により、緩衝材の力学特性の温度依存性に関するデータ取得が進められてきた（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）。温度を制御した膨潤圧測定試験では、温度増加により膨潤圧が増加する傾向があることが確認された。また、温度を制御した圧密試験では、温度増加に伴い間隙比-載荷圧関係が下方に移動することが確認された。このような温度増加に伴い間隙比-載荷圧関係が下方に移動することは、一般的な土質材料の力学特性の温度依存性の特徴として知られており（菊本他、2009）、ベントナイトに対しても同様であることが明らかとなった。この試験では、比較的高密度に締め固めた条件に対して圧密試験を実施していたため、変形量が小さい条件での試験であった。令和 5 年度は、より変形が生じる条件として、低密度条件でも圧密試験を実施し、低密度条件から試験をした場合でも上記に示した力学特性の温度依存性の特徴が生じることを確認した。

さらに、上記で示したような傾向の他にも、一般的な土質材料の力学挙動の温度依存性として、載荷圧一定条件で温度変化を加えた時に、過圧密状態では弾性的な変形が生じるのに対し、正規圧密状態では弾塑性的な変形が生じることが知られている（菊本他、2009）。そこで、ベントナイトに対してもこのような挙動が生じるのかどうかを確認するため、載荷圧一定条件で 80℃程度までの温度変化を与えた際の変形挙動を把握した。

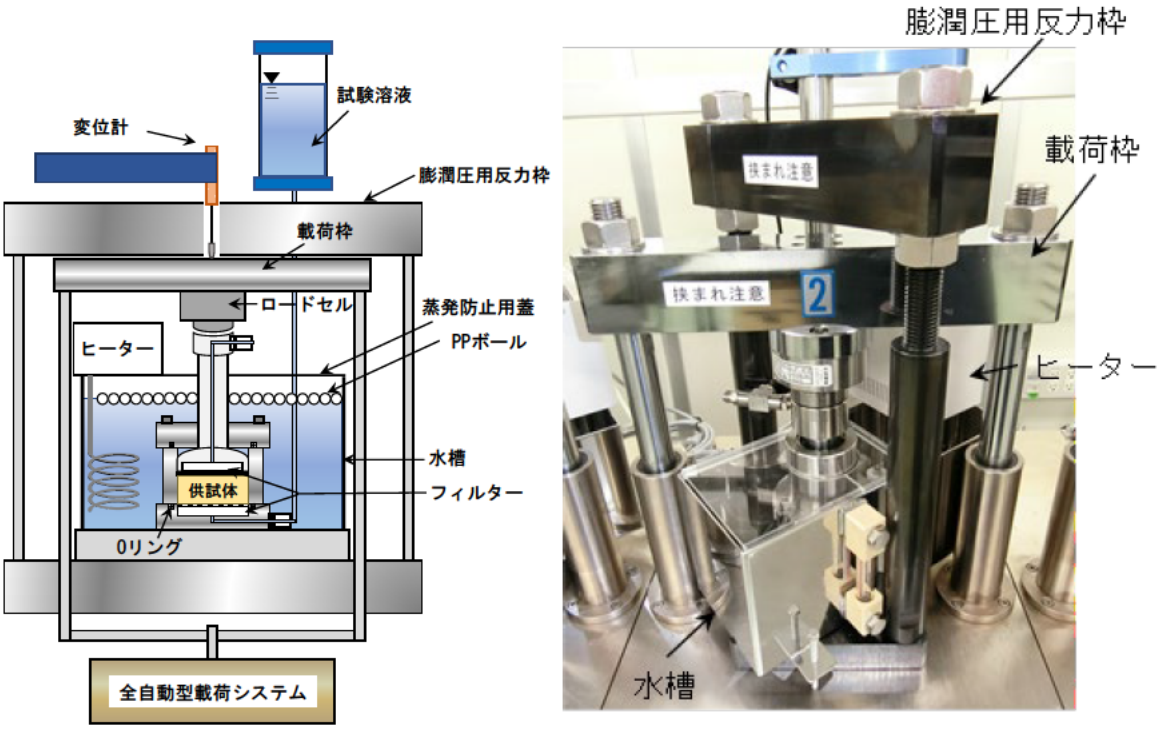
(2) 実施内容

①圧密試験

試験では、温度変形試験と同様、図 3.4-30 に示すように、温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置を用いた。

供試体は、クニゲル V1 とケイ砂を乾燥重量比 7:3 で混合した材料を用いて、乾燥密度 1.4Mg/m^3 まで締め固めたものを用いた。試験に用いたクニゲル V1 の含水比は約 7%であった。供試体寸法は直径 60mm、高さ 10mm とし、試験溶液は蒸留水を用いた。

試験手順は、クニゲル V1 とケイ砂を混合した材料を試験セル内で締め固めた後、室温（22℃）条件で、体積を拘束した状態で供試体へ給水を行い、膨潤圧の測定を行う。図 3.4-31 に示すように、室温で膨潤圧が定常に落ち着いたら飽和したとみなし、表 3.4-8 に示す条件で、所定の温度まで上昇させる。温度上昇に伴う膨潤圧変化が落ち着いた後、表 3.4-9 に示す載荷条件で圧密試験を実施した。



（a）試験装置概略図　　（b）試験装置写真

図 3.4-30　温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置

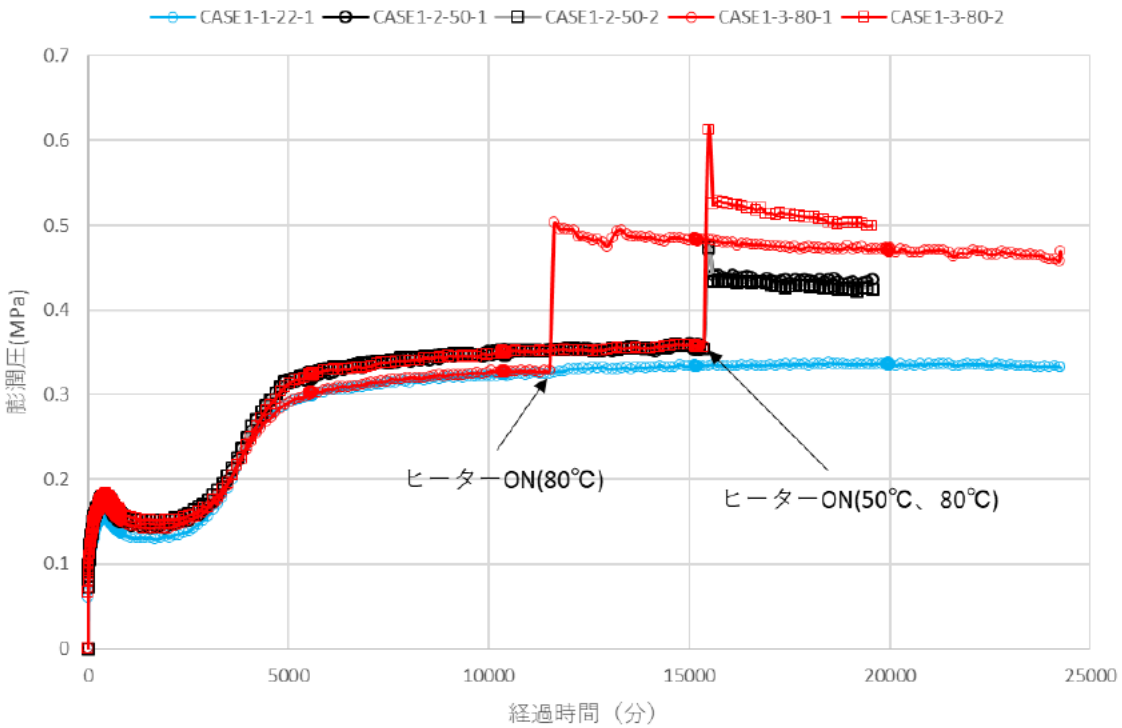


図 3.4-31 膨潤圧過程

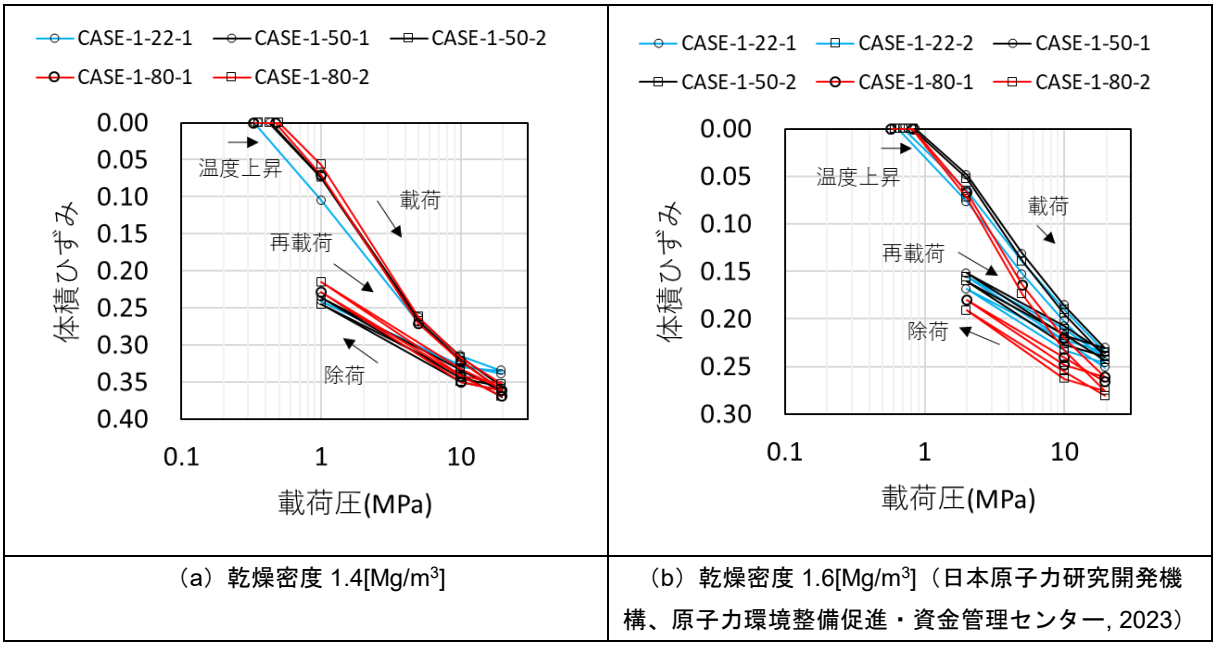
表 3.4-8 圧密試験ケース

試験 NO.	恒温水槽の使用	試験温度
CASE1-1-22-1	無	室温(22～25[℃])
CASE1-2-50-1	有	50 [℃]
CASE1-2-50-2	有	50 [℃]
CASE1-3-80-1	有	80 [℃]
CASE1-3-80-2	有	80 [℃]

表 3.4-9 載荷条件

載荷ステップ		載荷過程				除荷過程		再載荷過程	
	初期	STEP1	STEP2	STEP3	STEP4	STEP5	STEP6	STEP7	STEP8
設定圧(MPa)	膨潤圧	1	5	10	19.6	10	1	10	19.6

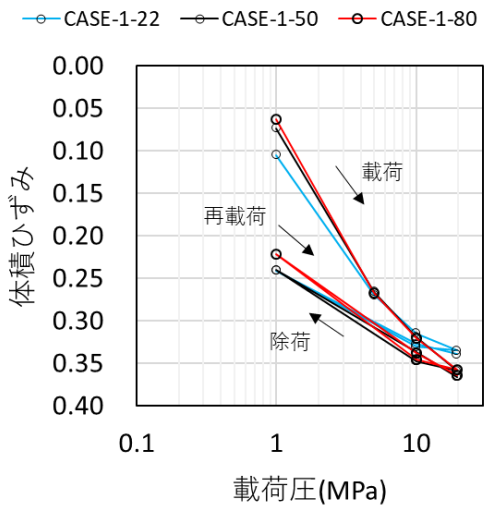
図 3.4-32 に体積ひずみ（圧縮：正）と載荷圧の関係、図 3.4-33 にその平均値をそれぞれ示す。図には令和 4 年度に実施した圧密試験結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター，2023）も併せて示す。ここでは、高密度（1.6Mg/m³）に締め固めた状態から試験を行ったため、比較的変形量が小さな条件での試験であった。令和 5 年度は、より変形量が大きくなるように、乾燥密度 1.4Mg/m³ で供試体を作製し、試験を実施した。そのため、低密度条件から試験を実施した方が、載荷により、より大きな体積ひずみが生じている。また、温度が高い条件では、19.6MPa が載荷された状態ではわずかながら大きな体積ひずみが生じており、低密度条件と高密度条件で同様であった。温度による変形量の違いでは、高密度条件では 50℃と 80℃で若干の差が出ていたが、低密度条件では 50℃が下方へシフトし、その差が縮む結果となった。



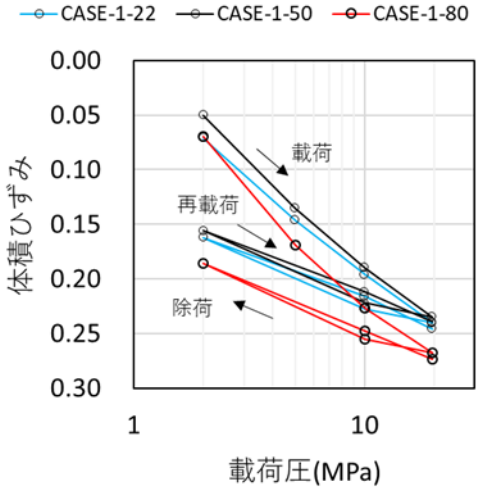
（a）乾燥密度 1.4[Mg/m³]

（b）乾燥密度 1.6[Mg/m³]（日本原子力研究開発機構、原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023）

図 3.4-32　体積ひずみと載荷圧関係



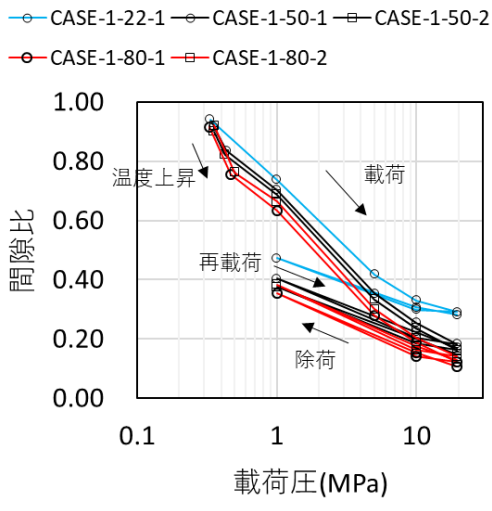
（a）乾燥密度 1.4[Mg/m^3]



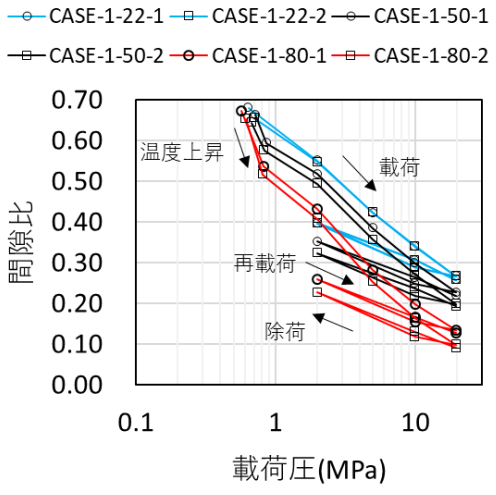
（b）乾燥密度 1.6[Mg/m^3]（日本原子力研究開発機構，原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023）

図 3.4-33　体積ひずみと載荷圧関係（平均値）

図 3.4-34 に間隙比と載荷圧の関係、図 3.4-35 にその平均値をそれぞれ示す。図には令和４年度に実施した圧密試験結果（日本原子力研究開発機構・原子力環境整備促進･資金管理センター, 2023）も併せて示す。間隙比の変化は、高密度及び低密度条件での結果を比較すると、室温及び 80℃ではほぼ同様の傾向を示し、温度が高くなれば間隙比-載荷圧関係は下方に移動している。また、19.6MPa を載荷した状態では、高密度及び低密度条件での条件では、ほぼ同一の間隙比を示している。一方、50℃の条件になると低密度条件では下方にシフトし、80℃との差が高密度条件と比較して縮む結果となった。

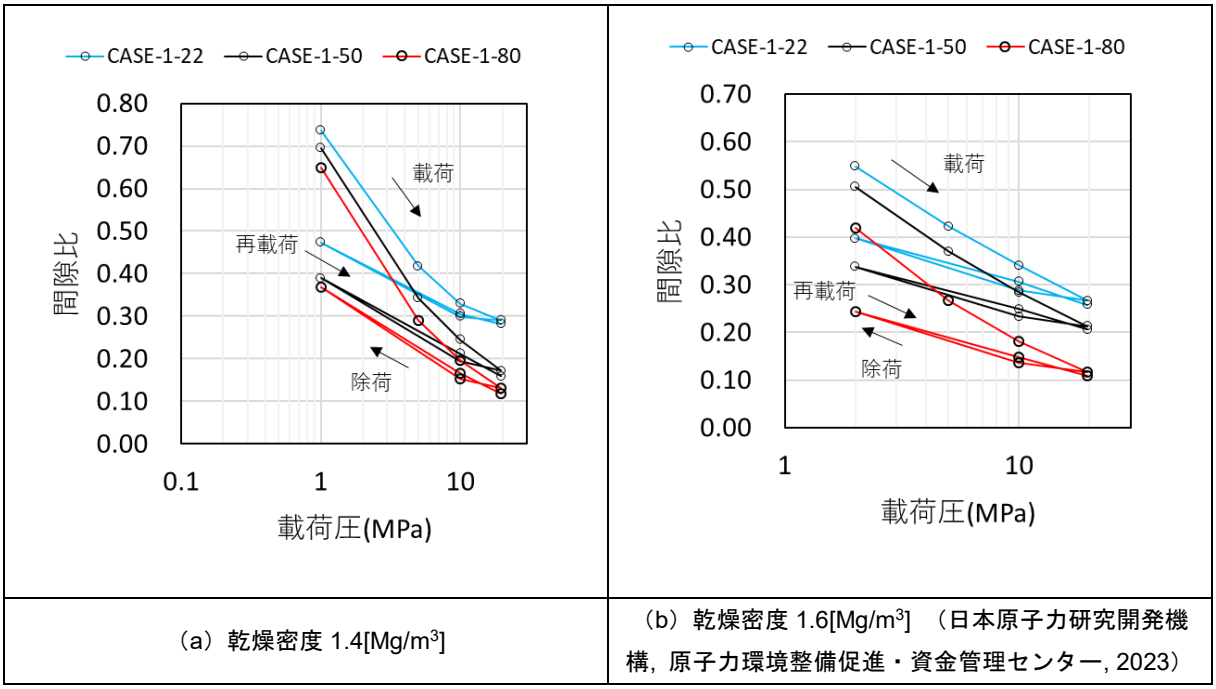


（a）乾燥密度 1.4[Mg/m^3]



（b）乾燥密度 1.6[Mg/m^3]（日本原子力研究開発機構，原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023）

図 3.4-34　間隙比と載荷圧関係



（a）乾燥密度 1.4[Mg/m^3]

（b）乾燥密度 1.6[Mg/m^3]（日本原子力研究開発機構，原子力環境整備促進・資金管理センター, 2023）

図 3.4-35　間隙比と載荷圧関係（平均値）

②温度変形試験

試験は、図 3.4-30 に示すように、温度制御が可能な水槽を用いた圧密試験装置を用いた。温度変形試験では、まず、所定の乾燥密度になるように試験セル内で締め固めた後、室温（22℃）条件で、体積を拘束した状態で供試体へ給水を行い、膨潤圧の測定を行う。膨潤圧が定常に落ち着いたら飽和したとみなし、表 3.4-10 に示す条件で載荷を行う。載荷に伴う変形が落ち着いた後、80℃まで段階的に温度を上昇させ、室温まで段階的に温度を低下させる。CASE-1 は正規圧密状態から温度変化を加えたケース、CASE-2 は過圧密比（過去に受けた最大有効応力と現在受けている有効応力との比）が 2 の過圧密状態から温度変化を加えたケース、CASE-3 は過圧密比が 6.5 の過圧密状態から温度変化を加えたケースである。試験材料は、クニゲル V1 とケイ砂を乾燥重量比 7：3 で混合したものを用い、供試体は高さ 10mm、直径 60mm とした。

表 3.4-10　試験条件

試験ケース	載荷過程	温度変化過程	初期乾燥密度
CASE-1-1	3MPa	室温→50℃→80℃→50℃→室温	1.6Mg/m^3
CASE-1-2	3MPa	室温→50℃→80℃→50℃→室温	1.6Mg/m^3
CASE-2-1	6MPa→3MPa	室温→50℃→80℃→50℃→室温	1.6Mg/m^3
CASE-2-2	6MPa→3MPa	室温→50℃→80℃→50℃→室温	1.6Mg/m^3
CASE-3-1	19.6MPa→3MPa	室温→50℃→80℃→50℃→室温	1.6Mg/m^3
CASE-3-2	19.6MPa→3MPa	室温→50℃→80℃→50℃→室温	1.6Mg/m^3

図 3.4-36 に載荷過程における間隙比と載荷圧の関係を示す。過圧密状態を想定した CASE-2 と CASE-3 では、所定の圧力が載荷された後、3MPa まで除荷されている。温度上昇前の間隙比は、19.6MPa の載荷圧を経験させた CASE-3 が最も小さな間隙比となっており、正規圧密状態を想

定した CASE-1 が最も大きな間隙比となっている。

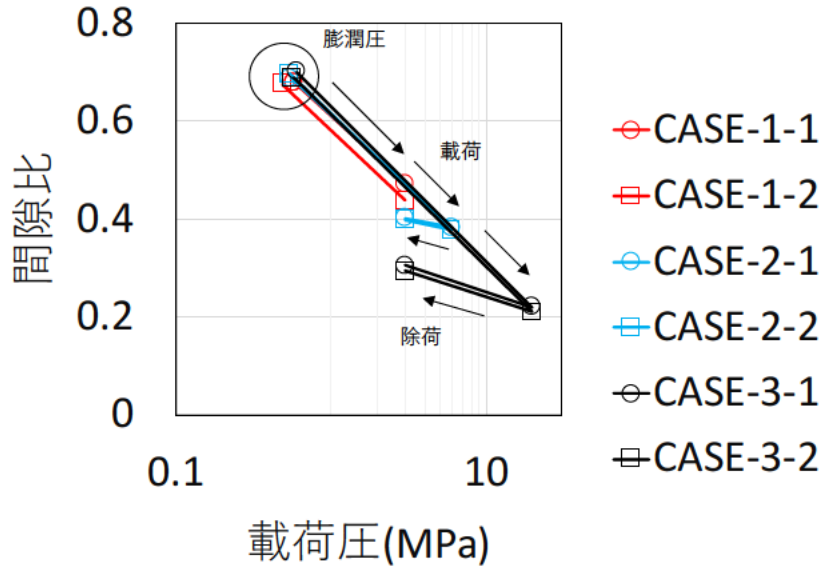


図 3.4-36　載荷過程での間隙比変化

図 3.4-37～図 3.4-42 に温度変化過程での変位量の時間変化を示す。正規圧密状態を想定した CASE-1 では、温度が上昇する過程では、まず大きな膨潤を示した後にやや圧縮し、その後、10 時間程度まで概ね変形は落ち着いている。10 時間経過以降はなだらかな圧縮挙動が生じている。水槽内の温度が定常となるのに 1 時間もかからなかったことから、比較的初期の 10 時間程度までの挙動は温度変化によるものと考えられる。水槽内の温度が定常となってから十分に時間が経過した 10 時間以降の挙動は、温度変化によって生じたものではなく、二次圧密に代表されるような粘性的な挙動によるものと推測される。一方、温度が低下する過程では、温度低下に伴い圧縮挙動が生じ、10 時間以降の長期的には、変位は概ね一定を示した。

過圧密状態を想定した CASE-2 や CASE-3 も、定性的な挙動は CASE-1 と同様であったが、温度上昇過程における 10 時間経過以降の粘性的な挙動は CASE-1 と比較すると小さかった。

図 3.4-43 に温度変化過程での体積ひずみと温度の関係を示す。温度を上昇させる際の体積ひずみを 0 とし、圧縮を正としている。いずれのケースでも温度増加に伴い膨張挙動を示し、温度低下により圧縮挙動を示す。温度増加による膨張量は過圧密比の大きい CASE-3 が最も大きい。また、過圧密状態を想定した CASE-2 と CASE-3 は、温度上昇と温度低下で弾性的な変形挙動を示しているのに対し、正規圧密状態を想定した CASE-1 は、弾塑性的な変形が生じていることがわかる。このように、過去の応力履歴によって挙動が変化する傾向は、一般的な土質材料の傾向と同様であることが明らかとなった。

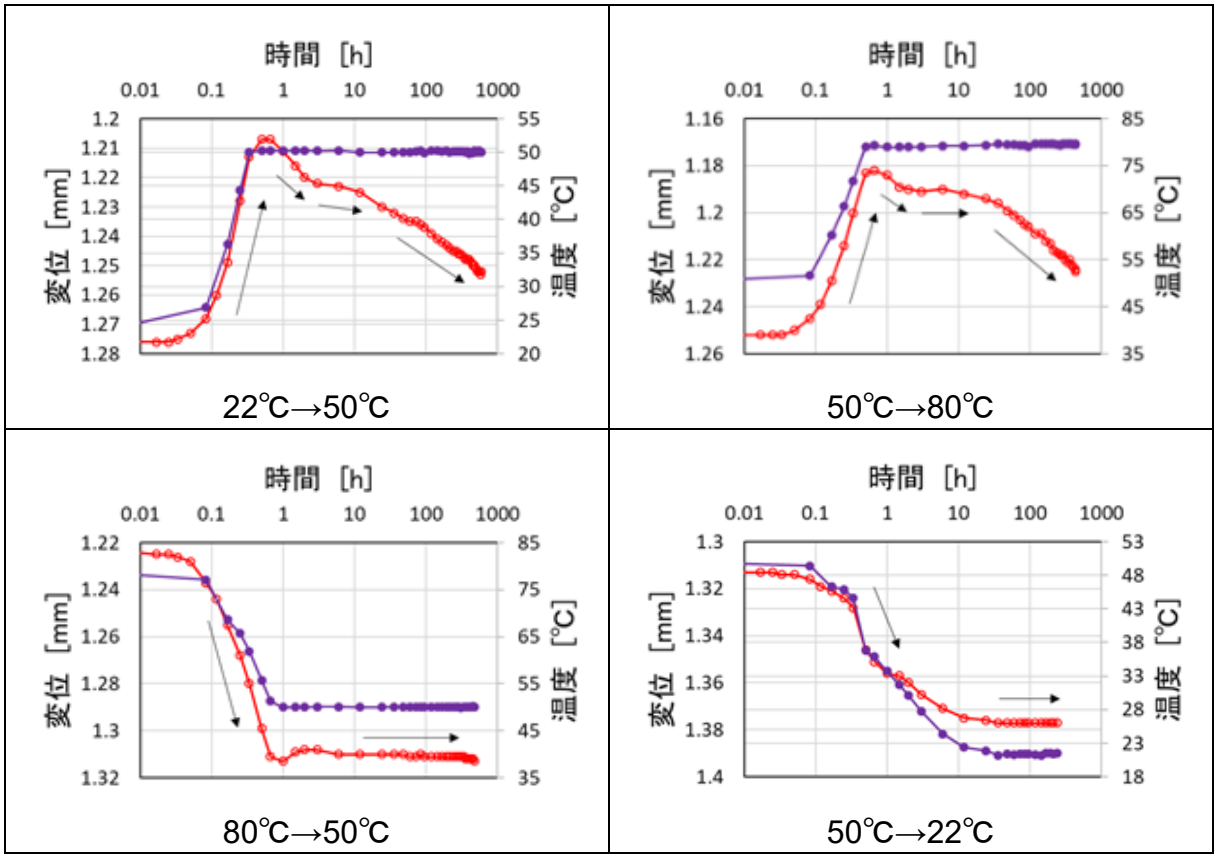


図 3.4-37　温度変化過程での変位の時間変化　　CASE-1-1　　（赤：変位、紫：温度）

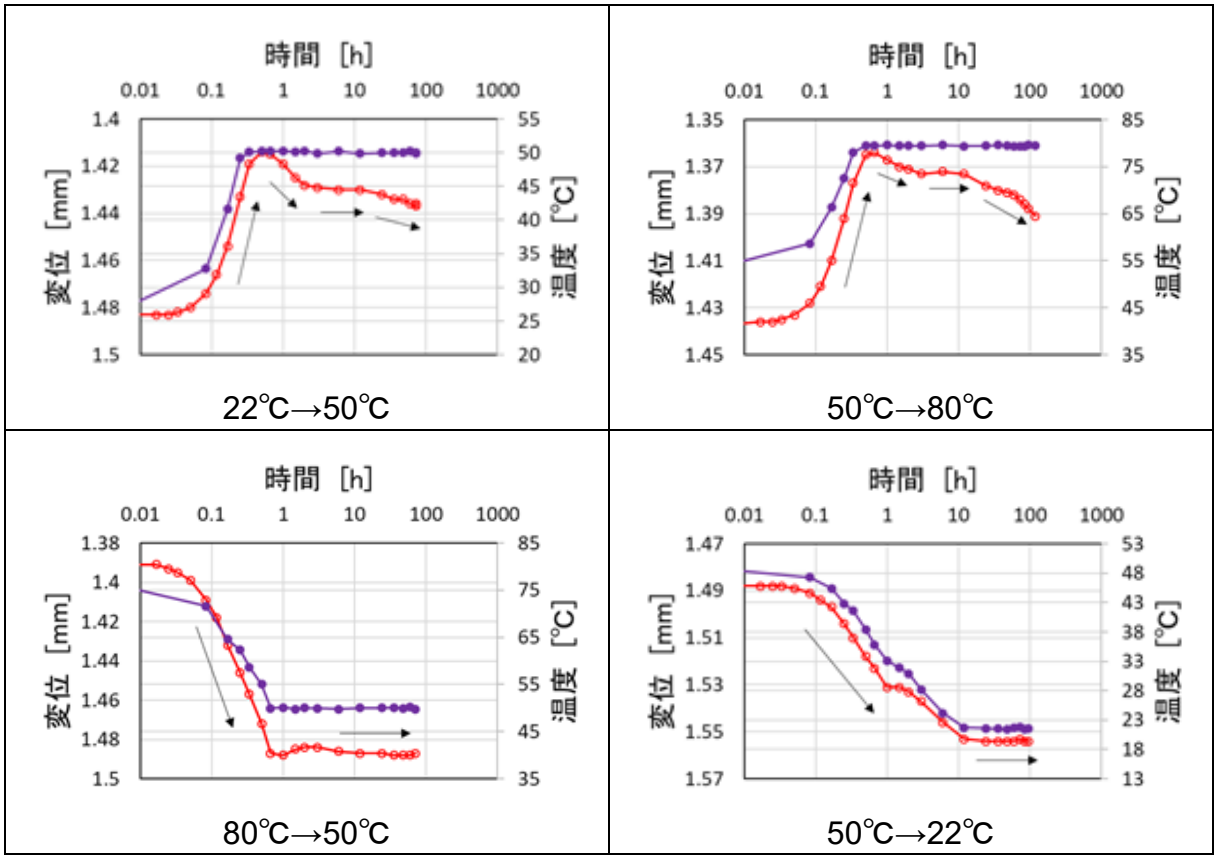


図 3.4-38　温度変化過程での変位の時間変化　　CASE-1-2　　（赤：変位、紫：温度）

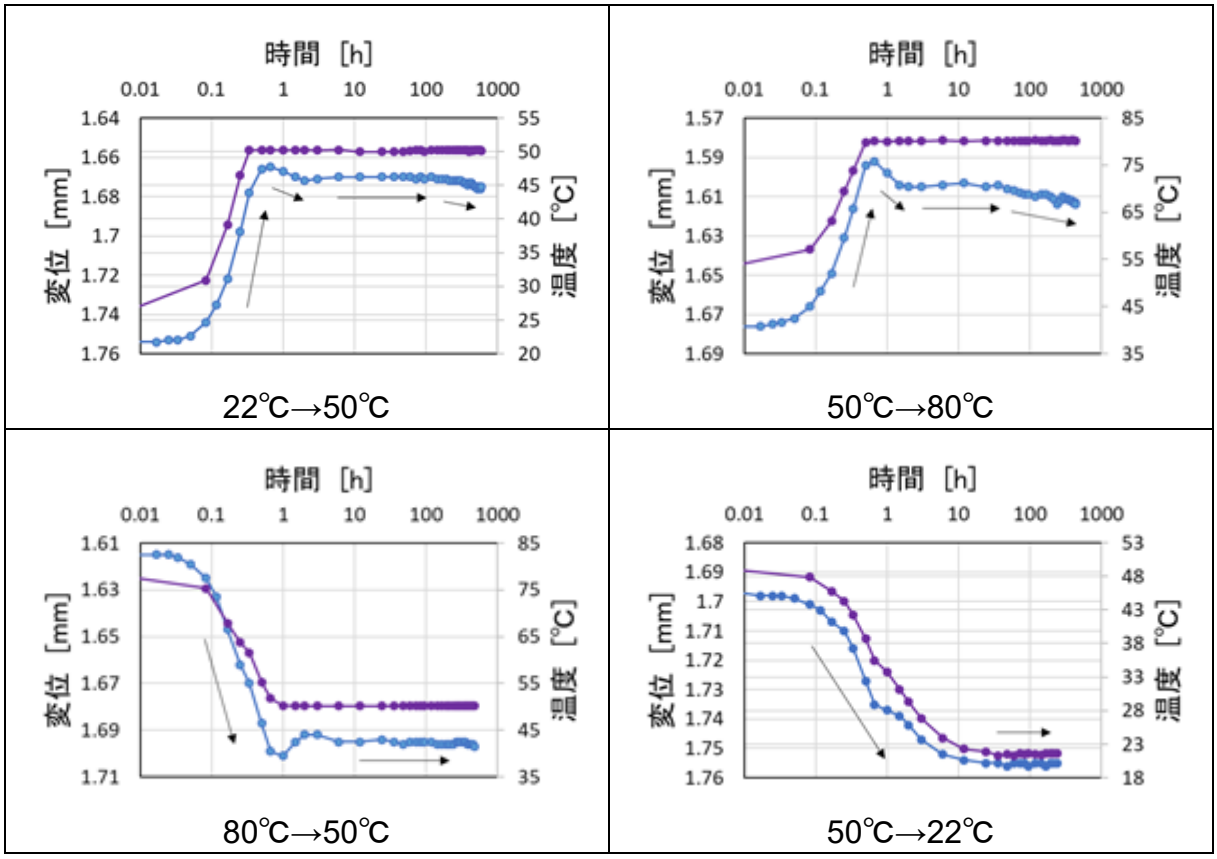


図 3.4-39　温度変化過程での変位の時間変化　　CASE-2-1　（青：変位、紫：温度）

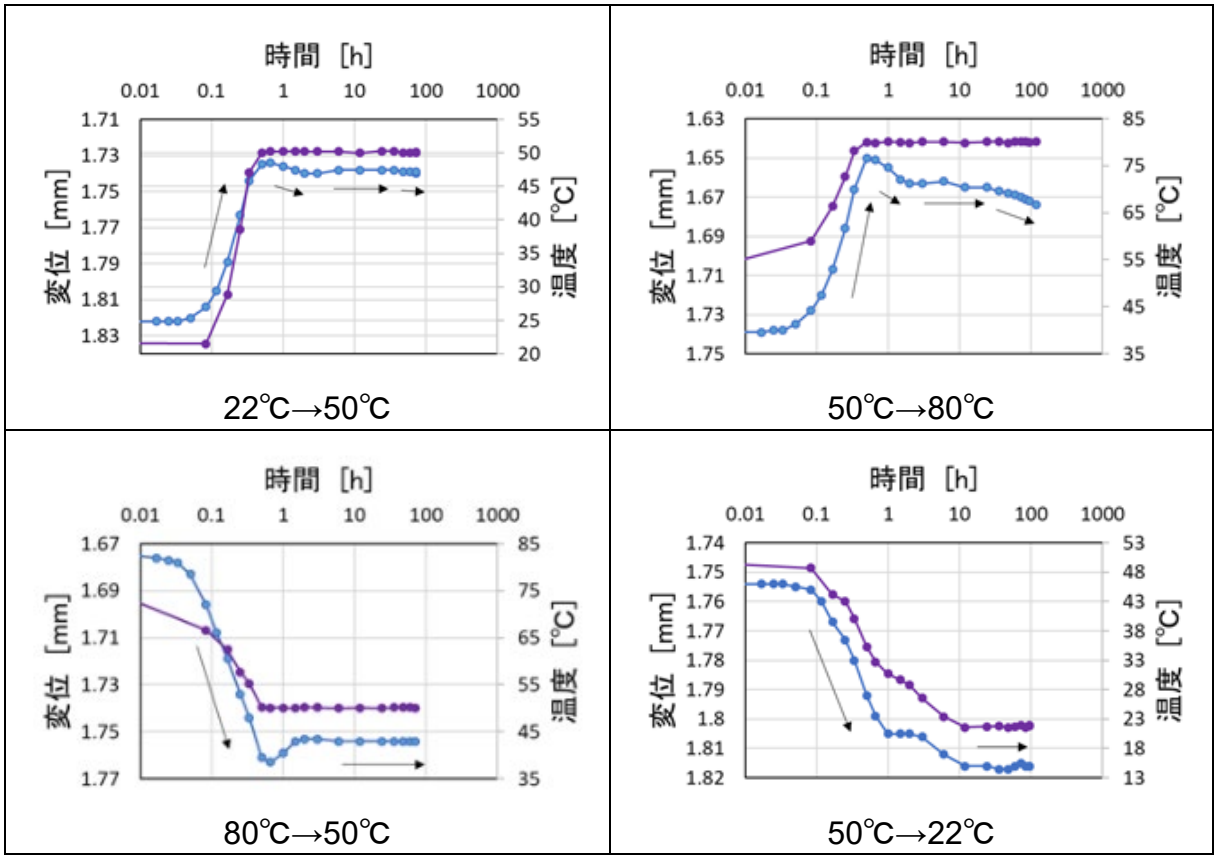


図 3.4-40　温度変化過程での変位の時間変化　　CASE-2-2　（青：変位、紫：温度）

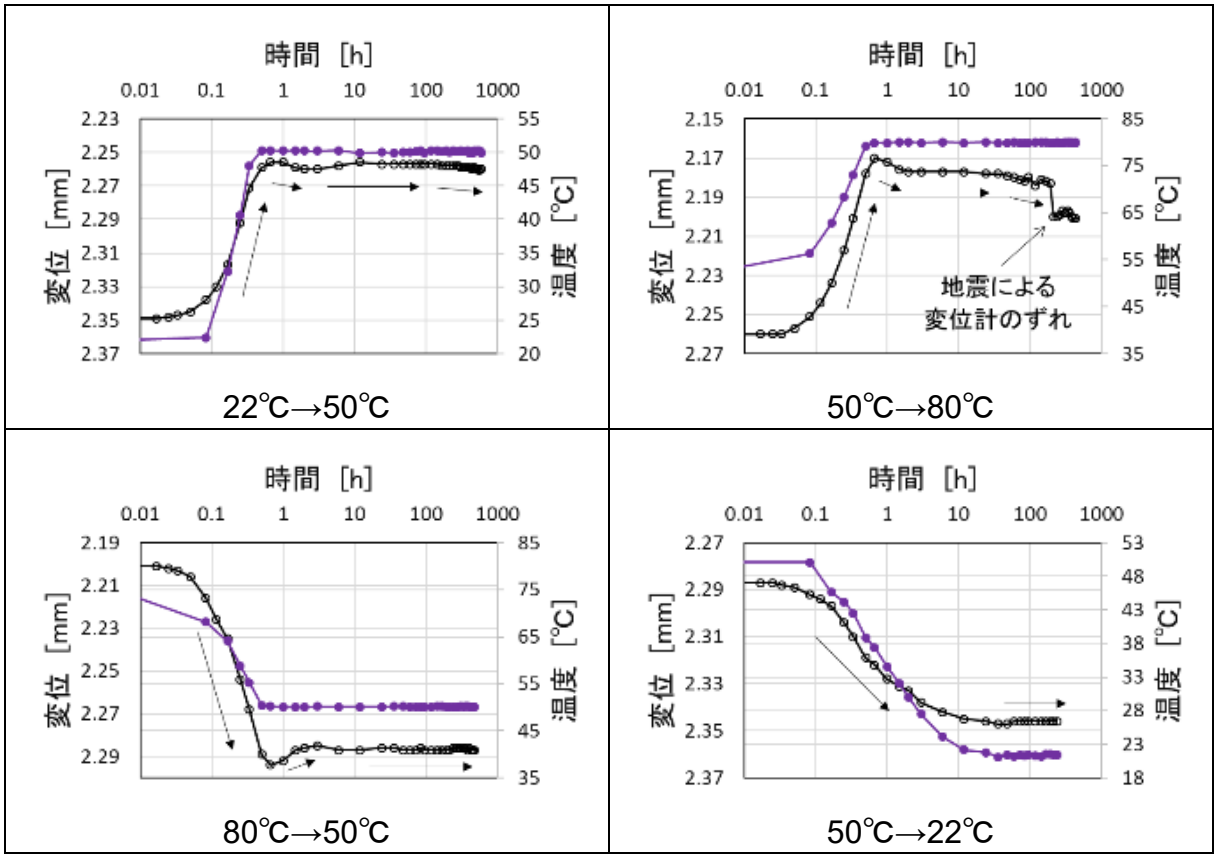


図 3.4-41　温度変化過程での変位の時間変化　　CASE-3-1　　（黒：変位、紫：温度）

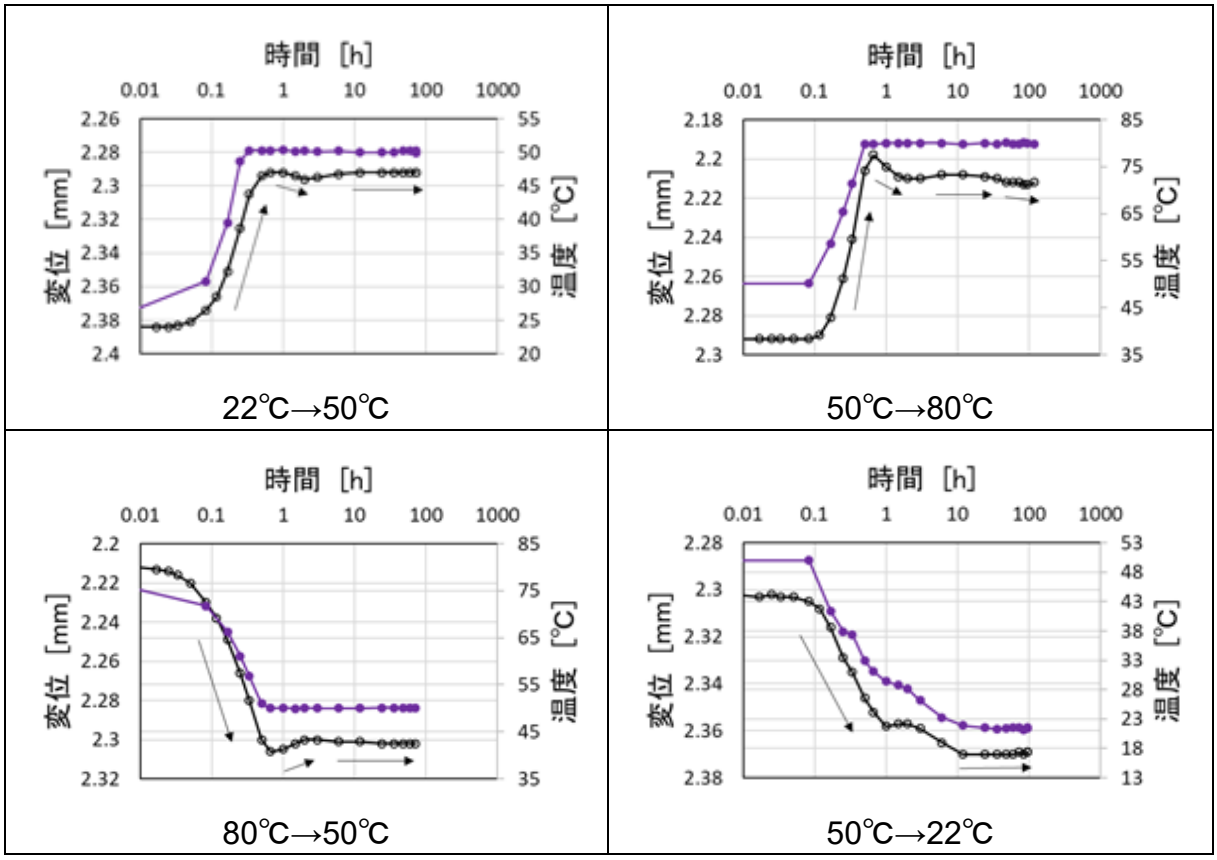


図 3.4-42　温度変化過程での変位の時間変化　　CASE-3-2　　（黒：変位、紫：温度）

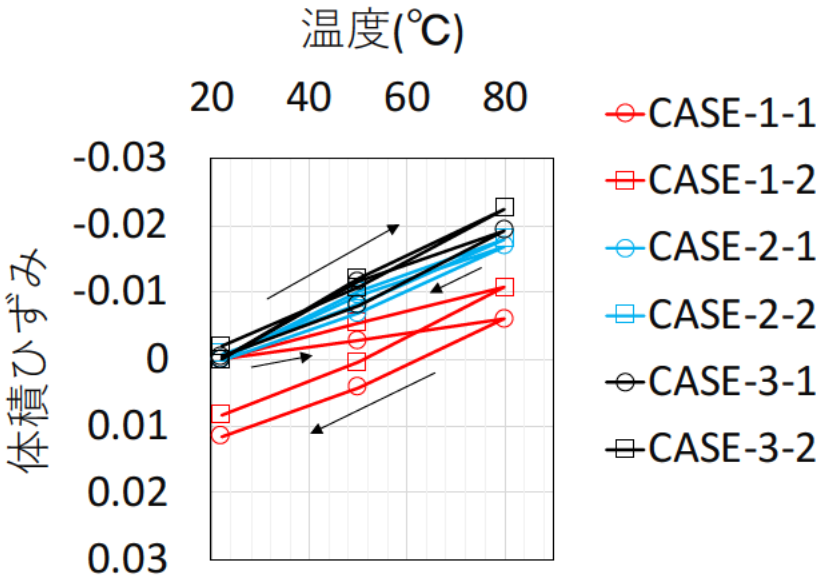


図 3.4-43　温度変化過程での体積ひずみ変化

(3) 成果と今後の課題

一般的な土質材料の力学挙動の温度依存性として、温度増加に伴い間隙比-載荷圧関係が下方に移動することが知られている。ベントナイトも、高密度に締固められた条件（1.6Mg/m³）で試験を実施すると、同様の傾向があることが明らかにされている。令和 5 年度は、低密度条件（1.4Mg/m³）に対して、温度を制御した圧密試験を実施した。その結果、低密度条件での圧密試験の結果は、高密度条件と比較すると、大きな変形が確認された。また、飽和したベントナイトの剛性は温度による影響が大きいことが確認でき、温度が高くなれば間隙比-載荷圧関係は下方に移動するなど、高密度条件での傾向と同様であることが確認された。

また、一般的な土質材料の力学挙動の温度依存性の特徴として、上記のほかに、載荷圧一定条件で温度変化を加えた時に、過圧密状態では弾性的な変形が生じるのに対し、正規圧密状態では弾塑性的な変形が生じることが知られている。そこで、ベントナイトに対してもこのような挙動が生じるのかどうかを確認するため、応力履歴を加えた供試体に対して、載荷圧一定条件で 80℃程度までの温度変化を与えた際の変形挙動を把握した。その結果、経験圧力が高いものほど温度増加に伴う変形量は大きくなる傾向が確認できた。また、過圧密状態を想定した CASE-2 と CASE-3 は、温度上昇と温度低下で弾性的な変形挙動を示しているのに対し、正規圧密状態を想定した CASE-1 は、弾塑性的な変形が生じていることがわかる。このように、過去の応力履歴によって挙動が変化する傾向は、一般的な土質材料の傾向と同様であることが明らかとなった。今後は、荷重条件及び温度の繰返し条件を変更するなど、試験条件を追加し、ベントナイトの力学挙動の温度依存性に関する知見を拡充していく予定である。また、熱履歴をあたえ、乾燥によるクラックが入った供試体がどのような力学的挙動を示すか知見を深める予定である。

参考文献

（3.1）

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- 総論レポート, JNC TN1400 99-020, 1999.

原子力発電環境整備機構, 2021

NAGRA, Grimsel Test Site News Letter, Year 3, Volume 6, 13p, 2021.

中山 雅（編）, 幌延深地層研究計画 令和 3 年度調査研究成果報告, JAEA-Review 2022-025, 2022.

中山 雅, 雑賀 敦, 木村 駿, 望月陽人, 青柳和平, 大野宏和, 宮川和也, 武田匡樹, 早野 明, 松岡稔幸, 櫻井彰孝, 宮良信勝, 石井英一, 杉田 裕, 笹本 広、棚井憲治, 佐藤稔紀, 大澤英昭, 北山彩水, 谷口直樹, 幌延深地層研究計画における地下施設での調査研究段階（第 3 段階：必須の課題 2015 － 2019 年度）研究成果報告書, JAEA-Research 2019-013, 2019.

中山雅(編), 幌延深地層研究計画 令和 4 年度調査研究成果報告, JAEA-Review 2023-032, 2023.

（3.2）

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.

（3.3）

Åkesson, M., Temperature buffer test: Final report, SKB Technical Report TR-12-04, 50p, 2012.

Chijimatsu, M., Fujita, T., Sugita, Y. and Taniguchi, W., Evaluation of coupled thermo-hydromechanical phenomena in the near field for geological disposal of high-level radioactive waste, Japan Nuclear Cycle Development Institute Report JNC TN8400 2000-08, 339p, 2000.

Couture, R.A., Steam rapidly reduces the swelling capacity of bentonite, Nature, Vol. 318, pp. 50-52, 1985.

Dohrmann, R., Olsson, S., Kaufhold, S. and Sellin, P., Mineralogical investigations of the first package of the alternative buffer material test－II. Exchangeable cation population rearrangement, Clay Minerals, Vol. 48, pp. 215-233, 2013.

Dohrmann, R., and Kaufhold, S., Characterization of the second parcel of the alternative buffer material (ABM) experiment－II. Exchangeable cation population rearrangement, Clays and Clay Minerals, Vol. 65, pp. 104-121, 2017.

Gaus, I., Garitte, B., Senger, R., Gens, A., Vasconcelos, R., Galcia-Sineriz, J.L., Trick, T., Wieczorek, K., Czaikowski, O., Schster, K., Mayor, J.C., Velasco, M., Kuhlmann, U. and Villar, M.V., The HE-E experiment: Lay-out, interpretation and THM modelling, Nagra Arbeitsbericht NAB 14-53, 140p, 2014.

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

Karnland, O., Sandén, T., Johannesson, L.E., Eriksen, T.E., Jansson, M., Wold, S., Pedersen, K., Motamedi, M. and Rosborg, B., Long term test of buffer material: Final report on the pilot parcels, SKB Technical Report TR-00-22, 131p, 2000.

Karnland, O., Olsson, S., Dueck, A., Birgesson, M., Nilsson, U., Hernan-Håkansson, T., Pedersen, K., Nilsson, S., Eriksen, T.E. and Rosborg, B., Long term test of buffer material at the Äspö Hard Rock Laboratory, LOT project: Final report on the A2 test parcel, SKB Technical Report TR-09-29, 296p, 2009.

Karnland, O., Olsson, S., Sandén, T., Fäith, B., Jansson, M., Eriksen, T.E., Svärdström, K., Rosborg, B. and Muurinen, A., Long term test of buffer material at the Äspö HRL, LOT project: Final report on the A0 test parcel, SKB Technical Report TR-09-31, 123p, 2011.

Kaufhold, S., Dohrmann, R., Sandén, T., Sellin, P. and Svensson, D., Mineralogical investigations of the first package of the alternative buffer material test－I. Alteration of bentonites, Clay Minerals, Vol. 48, pp. 199-213, 2013.

Kaufhold, S., Dohrmann, R., Götze, N. and Svensson, D., Characterization of the second parcel of the alternative buffer material (ABM) experiment－I. Mineralogical reactions, Clays and Clay Minerals, Vol. 65, pp. 27-41, 2017.

Kaufhold, S., Dohrmann, R., Ufer, K., Svensson, D. and Sellin, P., Mineralogical analysis of bentonite from the ABM5 heater experiment at Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, Minerals, Vol. 2021, pp. 669, 2021.

Kober, F., Schneeberger, R., Vomvoris, S., Finsterle, S. and Lanyon, B., The HotBENT Experiment: objectives, design, emplacement and early transient evolution, Geoenergy, Vol. 1, geoenergy2023-021, 2023,

増田良一, 雨宮清, 千々松正和, 足立格一郎, 小峯秀雄, ベントナイトを用いた緩衝材の材料仕様と締固め特性の関係, 土木学会論文集, No. 771, pp. 157-171, 2004.

茂呂吉司, Tran Duc Phi Oanh, 雨宮清, 釜石鉱山における粘土充填・熱負荷試験（II）, 動力炉・核燃料開発事業団 受託研究内容報告書 PNC ZJ 1412 97-001, 632p, 1997.

Müller, H.R., Garitte, B., Vogt, T., Köhler, S., Sasaki, T., Weber, H., Spillmann, T., Hertrich, M., Becker, J.K., Giroud, N., Cloet, V., Diomidis, N. and Vietor, T., Implementation of the full-scale emplacement (FE) experiment at the Mont Terri rock laboratory, Swiss Journal of Geosciences, Vol. 110, pp. 287-306, 2017.

中山雅（編）, 幌延深地層研究計画 令和 3 年度調査研究成果報告, JAEA-Review 2022-025, 164p, 2022.

日本原子力研究開発機構, 平成 20 年度地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響評価高度化開発報告書, 2009.

日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連処分システム化学影響評価高度化開発－6 ヶ年研究成果の取りまとめー, 2013.

日本原子力研究開発機構, 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, 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.

Pusch, R., On the effect of hot water vapor on MX-80 clay, SKB Technical Report TR-00-16, 41p, 2000.

Pusch, R., Bluemling, P. and Johnson, L., Performance of strongly compressed MX-80 pellets under repository-like conditions, Applied Clay Science, Vol. 23, pp. 239-244, 2003.

炭山守男, 土壌埋設鋼材の長期腐食挙動に関する研究（XI）, 核燃料サイクル開発機構 研究内容報告書 JNC TJ 8400 99-042, 191p, 1999.
Svensson, P.D. and Hansen, S., Redox chemistry in two iron-bentonite field experiments at Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden: An XRD and Fe K-edge XANES study, Clays and Clay Minerals, Vol. 61, pp. 566-579, 2013.
高倉望, 岡田哲実, 池野谷尚史, 澤田昌孝, 平野公平, 谷和夫, 堆積軟岩の原位置加熱実験計画（フェーズ III・IV）, 第 40 回岩盤力学に関するシンポジウム講演集, 講演番号 47, pp. 266-269, 2011.
Valter, M. and Plötze, M., Characteristics of variably saturated granular bentonite after long-term storage at near-field relevant temperatures, Clay Minerals, Vol. 48, pp. 343-361, 2013.
Wersin, P., Johnson, L.H. and McKinley, I.G., Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100°C: A critical review, Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 32, pp. 780-788, 2007.
Wersin, P., Jenni, A. and Mäder, U.K., Interaction of corroding iron with bentonite in the ABM1 experiment at Äspö, Sweden: A microscopic approach, Clays and Clay Minerals, Vol. 63, pp. 51-68, 2015.
Wersin, P., Hadi, J., Jenni, A., Svensson, D., Grenèche, J.M., Sellin, P. and Leupin, O.X., Interaction of corroding iron with eight bentonites in the alternative buffer materials field experiment (ABM2), Minerals, Vol. 2021, pp. 907, 2021.

（3.4）

原子力発電環境整備機構，技術開発成果概要 2021，NUMO-TR-22-02，2021.
小峯秀雄，大橋良哉，安原一哉，村上　哲，ベントナイトの膨潤圧・膨潤変形特性に及ぼす温度履歴の影響とその要因，土木学会論文集 C Vol.63 No.3, 731-741, 2007.
日本原子力研究開発機構, 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.
柴田雅博，山形順二，鈴木英明，緩衝材の特性試験(2)，PNC TN8410 92-169, 1992.
鈴木英明，藤田朝雄，緩衝材の膨潤特性，JNC TN8400 99-038, 1999.
菊池広人, 棚井憲治, 幌延地下水を用いた緩衝材・埋め戻し材の基本特性試験（試験報告）, JNC TN8430 2004-005, 86p, 2004.
黒澤 進, 久野義夫, 諸岡幸一, 上田真三, 圧縮成型ベントナイト中のコロイドの移行試験－3wt%NaCl 溶液及び Ca 型ベントナイトを用いた検討－（試験報告）, JNC TN8430 2003-006, 31p, 2003.
棚井憲治, 菊池広人, 中村邦彦, 田中幸久, 廣永道彦, ベントナイト系材料の標準的室内試験法構築に向けての試験法の現状調査と試験による検討- 日本原子力研究開発機構／電力中央研究所共同研究成果報告-（共同研究）, JAEA-Research2010-025, 186p, 2010.
本島貴之, 木ノ村幸士, 金子岳夫, 河原忠弘, 庭瀬一仁, 伊藤裕紀, ベントナイト透水特性に対する間隙水水質の影響に関する一考察, 土木学会第 65 回年次学術講演会, CS7-024, pp.47-48, 2010.

日本原子力研究開発機構, 原子力環境整備促進・資金管理センター, 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, 2023.
菊本統，京川裕之，中井照夫, ホサインシャヒン，第 21 回中部地盤工学シンポジウム 2009 年 8 月

4. ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化

4.1. 目的と 5 カ年の計画

4.1.1. 目的

廃棄体近傍のガスの発生は、初期のガス発生量が著しい場合は閉鎖前（操業中）の安全性への影響が懸念されるが、初期の発生量が少ない場合においても、閉鎖後長期における処分場への蓄圧、緩衝材の破過現象等に伴い、人工バリアである緩衝材等の変形等による力学安定性の低下やガスによる汚染水の押出しによる核種移行の加速といったニアフィールドの長期性能への影響が懸念される。そのため、ガス発生量を低減させる有効な対策を示し緩衝材へのガス影響を評価できるようにすることが、閉鎖後長期のニアフィールドの状態変遷や性能の評価において重要である。

TRU 廃棄物の処分においては、廃棄物及びその周辺に存在するセメント系材料等に含まれる水分の放射線分解、廃棄物に含まれる金属の還元腐食などに起因した水素等のガスの発生が想定される。例えば、グループ 2（ハル・エンドピース）の TRU 廃棄物（図 4-1）を対象として、水の放射線分解と人工バリア中の金属の腐食を水素ガスの発生源として設定し、経時的なガス発生量が処分場におけるイベントを考慮しながら評価されている（図 4-2）（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, 2023a）。

図 4-1　TRU 廃棄物の種類と高レベル放射性廃棄物（HLW）との比較

図 4-2 に示す結果から、廃棄物発生後 10,000 年までの期間では、水の放射線分解由来のガス発生量が金属腐食由来のガス発生量を大きく上回る。操業中から回収維持期間において放射性分解ガスにより処分場へのガスの漏洩や廃棄体パッケージ容器の破損等が生じて、回収時も含む閉鎖前の安全性に支障をきたす可能性を排除することに加え、廃棄体パッケージ B に求められる閉鎖後３００年程度の閉じ込め性を担保するために、廃棄体パッケージに封入後から閉鎖後３００年程度までの期間までは、廃棄体パッケージが許容できる内圧以下になるまで放射線分解ガスの発生量の低減が求められる。このようなことから、発熱量の大きい廃棄物に対する代替固化技術により、効果的に固型化材料からの放射線分解ガスの発生量を低減させる必要がある。

一方、上記の様な工学的対策により初期の放射線分解ガスの発生量を削減したとしても、長期にわたり金属腐食によるガスが発生し続けることで、ガスの破過に伴う核種移行の加速や卓越移行経路の発生等、ガス発生に伴って長期の安全評価に影響を及ぼす可能性がある。そのため、閉鎖後長期のガス移行挙動とそれによる緩衝材のバリア機能への影響がどの程度なのか把握するた

めに、水理－力学連成を考慮したガス移行評価モデルを構築し、安全評価の信頼性を向上させることが重要である。

このような背景から、ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化では、高レベル放射性廃棄物に比べよりガス発生量が多く、それによる閉鎖前から閉鎖後にわたり安全性への影響が大きいと考えられる TRU 廃棄物の処分場（図 4-3 右図）を対象として、廃棄体の固型化材（図 4-3 中図）を対象とした放射線分解ガスの発生量を低減させる廃棄物固化処理技術の開発、及び、より現実的な処分施設へのガス発生による影響評価を可能とするための、ベントナイト系緩衝材（図 4-3 右図）の水理－力学連成ガス移行評価モデルを高度化する。

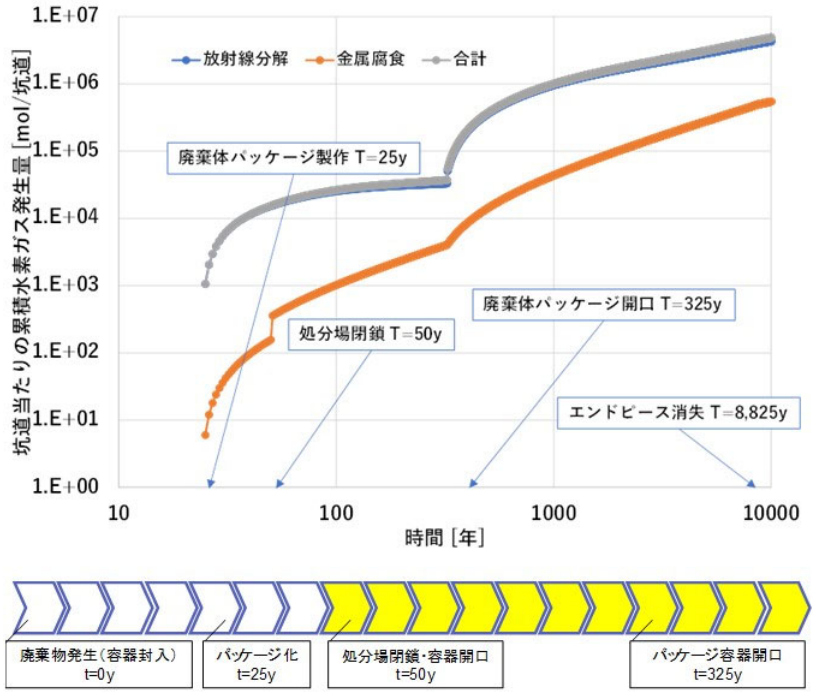
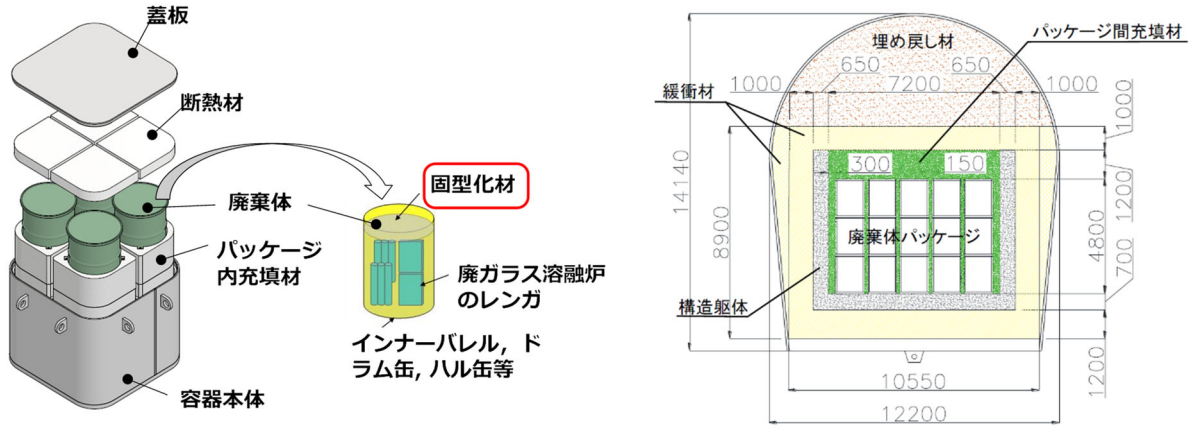


図 4-2　TRU 廃棄物グループ 2（ハルエンドピース）を対象とした廃棄体からのガス発生量

（現実的な工程・イベントと廃棄体パッケージ B による閉じこめ性を考慮、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(2023a)に加筆）



廃棄体パッケージ　　廃棄体　　TRU 廃棄物処分場

図 4-3　TRU 廃棄物の廃棄体（グループ 4H）、廃棄体パッケージ、処分場（原子力発電環境整備機構 (2021)の抜粋）の概念図

4.1.2. 5 か年の計画

ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化においては、TRU 廃棄物の処理過程での発熱量の大きい廃棄物に対する代替固化技術として、①ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発、より現実的な TRU 廃棄物処分場の閉鎖後長期にわたる発生ガスの影響評価として、②水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化を実施する。ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化の 5 か年の全体計画を図 4-4 に示す。

ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発では、前半の 2～3 か年でジオポリマー等の可能性のある固型化材料を対象に、固化性能を保ちつつガス発生量（主に放射性分解に寄与する水分量）を削減する改良を目的とした基礎試験を実施する。この基礎試験で見込みが得られた固型化材料を対象に、照射試験でガス発生量挙動を把握するとともに、後半の 3 か年で廃棄物の充填固化を想定した工学試験を実施して、TRU 廃棄物の固化処理への適用性を評価する。

水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化では、処分施設での緩衝材の形状や施工時の締固め方向等を反映したモックアップによるガス移行試験およびその解析評価に基づき、3 次元的なガス移行特性への材料特性のばらつき等の影響について現象理解を深める。また、空隙構造と透水係数の関係を移行媒体であるベントナイトの微細構造のモンテカルロ法による解析により評価する。さらに、材料特性の影響を考慮した 3 次元的なガス移行特性や空隙構造の変化に伴う移行特性の変化を再現可能なように、水理－力学連成を考慮してガス移行評価技術を高度化することにより、処分施設のより現実的な安全性の評価を行う。これらはいずれの検討も 5 か年にわたり実施する計画である。

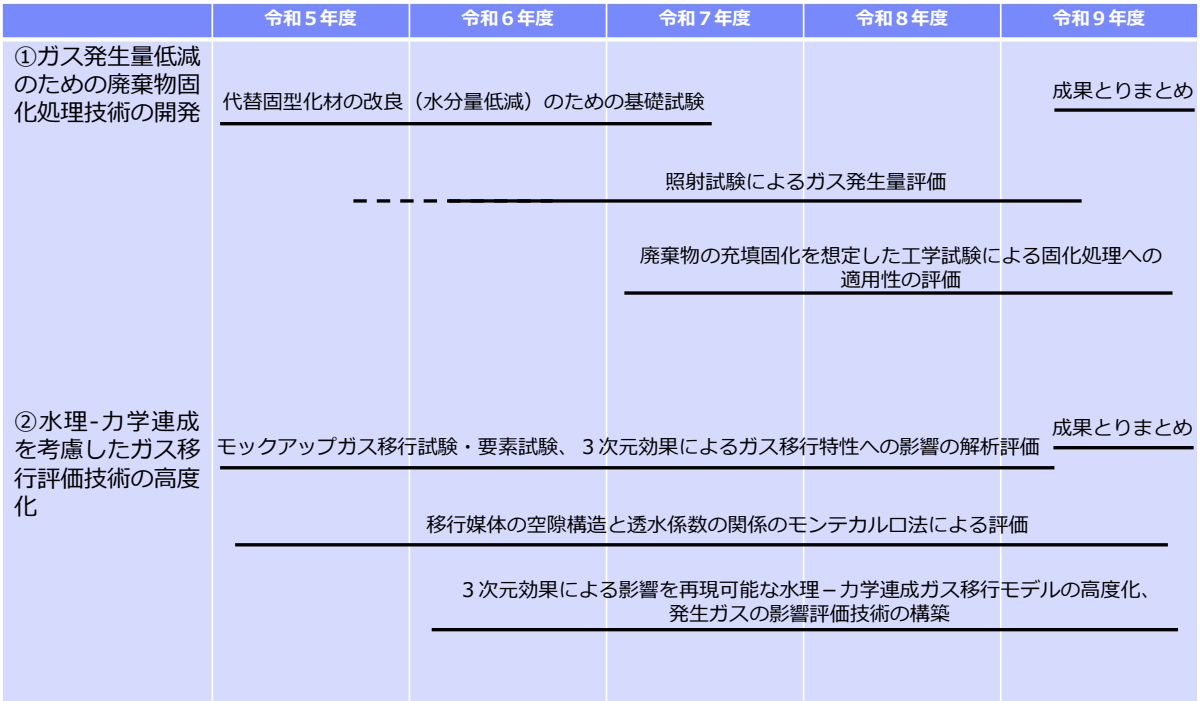


図 4-4　ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化の 5 か年の実施計画

4.2. ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発

4.2.1. 背景と目的

TRU 廃棄物の処分において、初期の廃棄体近傍のガス発生量が著しく多い場合、内圧の上昇に伴う廃棄体からの水素ガスの漏洩による操業中の安全性への影響やパッケージの閉じ込め性の喪失等が懸念されるため、ガス発生量を低減させるための有効な工学的対策が求められる。

昨年度までの TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発（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, 2023b）において、セメント系内部充填材に含まれる自由水量を低減することにより放射線分解による水素ガス発生量が低減できることを確認した。このような特性から、打設後の乾燥工程の管理によりガス発生量を低減させることが可能なセメント系内部充填材の実用性への見通しが得られた。しかしながら、TRU 廃棄物のうち発熱量が大きく表面線量の高いグループ 4Hの廃棄物（図 4-5 参照）をセメント系材料によって充填固化または均質固化した廃棄体からのガス発生量は、固型化材が直接廃棄体と接触することからα線、β線の寄与が大きく、γ線の遮蔽による減衰も小さいために、固型化材は内部充填材に比べて吸収線量が高く、ガス発生量も桁違いに多いことが予測される。そのため、ガス発生量の低減化の観点からは、内部充填材よりも廃棄体の固化処理に用いる固型化材料に対してガス発生量低減対策をとる方がより大きな効果が見込むことができる。

これらの背景を踏まえ、ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発では、TRU 廃棄物のうち特にグループ４Hに分類される発熱量の大きい廃棄物の代替固化処理について、可能性のある固型化材料を対象に廃棄物の固化処理を想定した試験を実施し、閉鎖前の安全性に係る有効なガス発生量低減対策を示すことを目的とする。

グループ4H

区分	廃棄体種類	処理方法	廃棄体の形状	固型化方法	発熱量(W/本)		廃棄体重量	発生量	設定物量	設定本数
					基準年	25年後	(t/本)	(m^3)	(m^3)	(本)
原燃再処理操業	不燃物Ⅰ(機器廃品等)	溶融	200Lドラム缶	モルタル充填固化	13	4	0.88	820	861	4,310
原燃再処理操業	不燃物Ⅰ(溶融炉)	切断	インナーパレル	モルタル充填固化	210	60	0.91	412	433	1,134
JAEA再処理操業	不燃物Ⅳ(非金属Ⅱ)	ー	ハル缶	モルタル充填固化	51	19	1.08	15	16	36
JAEA再処理解体	難燃物Ⅰ(二次廃棄物)	焼却	200Lドラム缶	セメント混練固化	7	8	0.43	2	3	8
JAEA再処理解体	不燃物Ⅶ(非金属Ⅱ(廃棄体化処理)	ー	ハル缶	モルタル充填固化	51	19	1.08	8	9	18
JAEA MOX解体	可燃物Ⅰ(一次廃棄物)	焼却	200Lドラム缶	セメント混練固化	5	6	0.43	17	18	88
JAEA MOX解体	難燃物Ⅰ(一次廃棄物)	焼却	200Lドラム缶	セメント混練固化	7	8	0.43	4	5	20
JAEA MOX解体	可燃物Ⅱ(二次廃棄物)	焼却	200Lドラム缶	セメント混練固化	7	8	0.43	21	23	109
JAEA MOX解体	難燃物Ⅱ(二次廃棄物)	焼却	200Lドラム缶	セメント混練固化	7	8	0.43	10	11	52
							小計	1,309	1,379	5,775

これまで十分な検討がされていないが、他の廃棄物グループに比べて発熱量が大きい≒表面線量が高い
⇒<u>放射線分解ガスによる内圧上昇</u>による廃棄体パッケージBの閉じ込め性への影響

グループ1

原燃再処理操業	廃銀吸着材	ー	200Lドラム缶	セメント混練固化	<1	<1	0.365	280	294	1,470

グループ2

原燃再処理操業	ハル・エンドピース	圧縮	キャニスタ	キャニスタ充填・密閉化	61	4	0.85	4852	5,095	26,250

グループ3

JAEA再処理操業	溶媒洗浄廃液Ⅰ(ｱｽﾌｧﾙﾄ固化体(M	ー	200Lドラム缶	アスファルト固化	<1	<1	0.28	3231	3,393	16,963

グループ4L

原燃再処理操業	ハル缶水	濃縮	200Lドラム缶	セメント混練固化	15	1	0.43	688	723	3,612

図 4-5 対象とするグループ４Hの TRU 廃棄物の特性

（原子力発電環境整備機構（2021)の抜粋・加筆）

4.2.2. 代替固化処理技術の対象となる固型化材料の選定

放射性廃棄物は放射性物質の閉じ込めと被ばくの防護のために固化処理を行う。低レベル放射性廃棄物等で実用化されている固化処理、核種移行抑制の観点で検討途中の固化処理に加え、福島第一原子力発電で発生している汚染水処理後の高線量のスラッジ等の二次廃棄物を対象に検討されている固化処理も含め、既存の放射性廃棄物の固化処理技術を表 4-1 にまとめた。

表 4-1　既存の放射性廃棄物の固化処理技術

固化方法		対象の廃棄物 （斜字は実用化の検討）	グループ4H適用可能性 （青字は懸念点）
セメント固化	セメント混練固化 （均質固化体） モルタル充填固化 （充填固化体）	TRU(*Gr1, 3, 4L, 4H*), LLW(濃縮廃液、廃樹脂、焼却灰等) TRU(Gr3, 4L, *4H*), LLW（金属類、コンクリート、プラスチック類、ゴム類等）	OPCに比べガス発生量（G値）が極めて低い材料であること。
ジオポリマー固化		*ガス発生が懸念される高線量廃棄物（福島汚染水処理後のスラッジ等の二次廃棄物）*	ガス発生量低減は前提。セメント固化と同程度の設備で導入可か。
アスファルト固化	均質固化体	TRU（Gr3）, LLW(濃縮廃液等)	有機物の放射線分解等
プラスチック固化	均質固化体	LLW(濃縮廃液等)	有機物の放射線分解等
セラミック固化	アパタイト	*HLW, TRU(Gr1), 福島二次廃棄物*	製造時のハンドリング
溶融固化		LLW雑固体	熱影響、溶融炉等の設備
ガラス固化	ホウケイ酸ガラス BPIガラス	HLW *TRU(Gr1)*	熱影響、溶融炉等の設備
金属マトリックス固化	HIP, 銅ﾏﾄﾘｯｸｽ	*TRU(Gr1, 2)*	熱影響、溶融炉等の設備

ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発において対象とする高発熱性のグループ 4Hの廃棄物は、図 4-5 に示す通り、NUMO の包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構（2021））のレファレンスでは焼却灰のセメント混錬固化か固体廃棄物のモルタル充填固化とされている。この代替固化処理技術の開発においては、表 4-1 に挙げた既存の技術を改良して適用可能性を検討することとし、高発熱性の廃棄物のため熱影響が懸念されるもの、高い表面線量のために放射線分解が懸念されるもの、固化体の製造時のハンドリングや品質管理が難しいもの、大型の固化処理プラントが必要なもの等の懸念点がなく、セメント固化と同等の設備で固化処理が可能なジオポリマー固化及びセメント固化を対象とすることとした。ただし、代替固化処理に固型化材料として使用するセメントは OPC（普通ポルトランドセメント）に比べガス発生量が極めて低い材料である必要がある。

これらの二つの固化方法において、各固化処理技術に用いる固型化材料の基本特性に基づき、ガス発生量が低いもの、あるいはガス発生量の低減のため固化処理技術の改良の方向性が明確な特徴を有しているものを検討することとして、表 4-2 に示す５種類の固型化材料を選定した。

表 4-2　本節の技術開発で検討する固化処理技術と主な特徴

固化方法	主な特徴	課題(デメリット)他
セメント固化 ➢ 高強度高緻密コンクリート	練り混ぜ水が少なく（水和反応で消費され自由水量が少ない）、ガス発生量が低い。 構造が緻密（空隙率少）で高強度かつ低透水性	流動性が低い 後充填型のパッケージ内充填材としても検討
ジオポリマー固化 ➢ 無機添加剤含有ｼﾞｵﾎﾟﾘﾏｰ（湿式）	メタカオリン系のジオポリマー ホウ酸の添加による可使時間の向上とガス発生量の低減が見込まれる	品質の安定性 基礎データの不足
➢ 分散剤添加高炉スラグｼﾞｵﾎﾟﾘﾏｰ(湿式)	高炉スラグ系のジオポリマー 分散剤を含む特殊混和材の添加による練り混ぜ水の低減が見込まれる	品質の安定性 基礎データの不足
➢ 乾式ｼﾞｵﾎﾟﾘﾏｰ	アルミナ+水ガラスを乾式で反応・固化したジオポリマー 練り混ぜ水が不要かつ加熱条件の最適化による水分量の低減が見込まれる	強度特性 基礎データの不足
➢ メタカオリン系ｼﾞｵﾎﾟﾘﾏｰ（JAEA）	複数の無機粉末材料及び活性剤の組み合わせによるジオポリマー 廃棄物性状に対する配合のマッチングを見込んでいる	基礎データの不足

4.2.3. 実施内容

５ヵ年の実施計画（図 4-4）で示したように、前半の 2～3 か年の主要な実施内容は固型化材料のガス発生量（主に放射性分解に寄与する水分量）を削減するための改良である。

代替固化処理技術における固型化材料に求められる主要な要件は、ガス発生量、機械的強度、流動性・充填性である。

ガス発生量に関しては、固化処理に使う練り混ぜ水というよりは、硬化体中の放射線分解に寄与する水分をどこまで低減できるかが最も重要なポイントとなる。一方で、練り混ぜ水等を削減して水分量の低減させることは流動性や固化体の強度に当然影響する。

機械的強度に関しては、TRU 廃棄物には固型化材への強度は要求されていない。一方で、事故時の飛散の防止等、搬送・操業中の安全性確保の観点から、固定できる程度の強度を有することが望ましい。本検討では、少なくとも一体で固化できること（材料分離等がないこと）を最低条件とする。なお、参考として、LLW の２号・３号廃棄体（充填固化体）（日本原燃, 2021）では、1000kg の廃棄体を 2 号：9 段積み、3 号：10 段積みに耐えられる強度から、硬化した後（材齢 28 日後の強度）の固型化材料等の圧縮強度が約 30MPa（300kgf/cm2）以上であることとされている。

流動性・充填性に関しては、流動性が著しく低くなり、充填性に影響するケースは避けなければならない。参考として、LLW の充填固化体では、高性能減水剤を用いない場合は P ロート流下時間 16～20 秒と報告されている（原環センター, 1998）。

したがって、固型化材料の改良においては、これらの要件をどこまで満たすか、ガス発生量低減の重要性を反映して言い換えると、「強度や流動性をある程度保ちつつ、いかに放射線分解に寄与する固化体中の水分量を減らせるか」が固型化材料の改良のポイントである。

この改良のポイント念頭に、発熱量の大きい TRU 廃棄物の代替固化処理技術の実現に見通しをつけ、発生ガスによる閉鎖前の安全性低下のリスクを低減させる、という５か年の成果目標の達成に向けて、令和５年度は、選定した各固型化材料（ジオポリマー固化４種類（そのうち１種類は令和６年度より実施予定）、セメント固化１種類：表 4-2）の特性に応じて以下の項目を実施する。

① 固型化材料の基本特性とガス発生量低減化のための改良ポイントの整理

対象とする固型化材料について、これまでの検討実績に基づき、固化処理に係る条件・データ（養生条件や流動性、強度発現性等）、ガス発生に係るデータ（含水量や照射試験によるガス発生特性等）、機械的物性（一軸圧縮強度等）、物理特性（空隙特性や物質移行特性）及び化学特性（化学特性や収着特性）を整理し、固化処理技術においてガス発生量低減化を図る際の製造方法（使用する原料と配合及び固型化工程）における改良のポイントを明確化し、改良試験の計画を示す。

② 放射性分解ガス低減化のための固化処理技術の改良

固型化材料の固化体の製造方法、特に配合や養生・乾燥工程に対して、固化性能をできるだけ維持しつつ放射線分解による水素ガス発生の要因となる水分量を削減することを目的として、室内試験等により配合や養生・乾燥条件の最適化を検討する。

③ ガス発生挙動に係る物性データの取得

製作した固化体のガス発生に係る特性、物理特性および化学特性に関わるデータを室内試験や分析により取得する。

(1)　ジオポリマー固化

ジオポリマーはアルミナシリカ粉末とアルカリ溶液の脱水縮重合反応で生じる固化体の総称である。日本コンクリート工学会の「TC-155A 建設分野へのジオポリマー技術の適用に関する研究委員会」では、「セメントクリンカーを使用せず、非晶質のケイ酸アルミニウムを主成分とした原料（活性フィラー）とアルカリ金属のケイ酸塩、炭酸塩、水酸化物水溶液の少なくとも 1 種類（アルカリ溶液）を用いて硬化させたもの」と定義している。活性フィラーには、メタカオリンの他に、フライアッシュ、高炉スラグ微粉末などの副産物も挙げられる。アルカリ金属のケイ酸塩溶液はアルカリ刺激剤ともいわれ、水ガラスあるいはそれに NaOH 溶液や KOH 溶液を混合したものが挙げられる。

一般にジオポリマーは水ガラス、活性フィラーから溶出したモノマーの脱水縮重合反応によりポリマー化、すなわち硬化が進むため（図 4-6）、硬化後の骨格構造に水を含まず、脱水縮重合反応の反応場として使用される水を硬化後に取り除くことで、水素発生量の低減が可能と考えられている。また、室温で混練することが可能なため、セメント固化と同等の設備で処理可能で、乾燥処理も含め比較的低温条件の処理でガラス固化体に近い性質の固化体が得られる技術と考えている（図 4-7）。

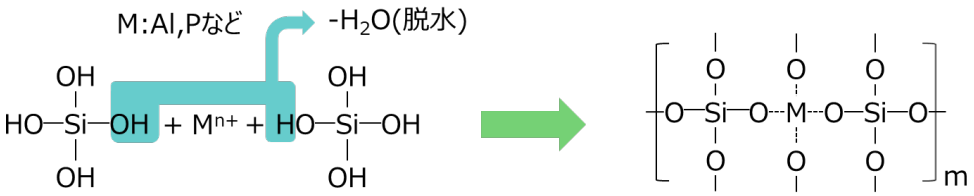
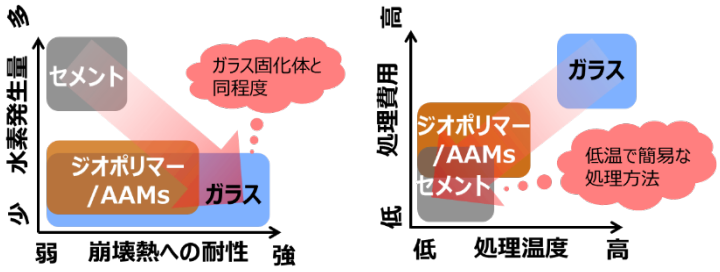


図 4-6　一般的なジオポリマーの分子構造と脱水縮重合反応（日本コンクリート工学会, 2021）



※AAMs：Alkali Activated Materials

図 4-7　セメント、ガラス、ジオポリマー固化の位置づけのイメージ

1)　無機添加剤含有ジオポリマー

無機添加剤含有ジオポリマーは、無機添加剤としてホウ酸を添加することで、添加していない固型化材料と比較して、混練開始から混練物に流動性がなくなるまでの低粘度を維持する時間（可使時間）を長くできるだけでなく、固化体の水素発生 G 値（室谷, 2017）を低くできることを確認しており（赤山ほか, 2021；特開 2022-116814, 2022；特開 2023-84411, 2023）、添加剤や骨材等の配合の検討により固型化材料の更なる改良が期待できる。また、固化体中の含有水の低減を目的として乾燥処理方法を改良することで放射線分解による水素発生量の低減が可能と考えられる。

① 固型化材料の基本特性とガス発生量低減化のための改良ポイントの整理

(a) 固化方法

無機添加剤含有ジオポリマーは材料の混合時に練り混ぜ水を加える湿式手法で養生する。図 4-8 に示す固化処理の工程では、セメント固化設備と同様の工程、設備を想定しており、その後に必要に応じて乾燥処理を加えることで水素対策として固化体の含有水の低減を行う。

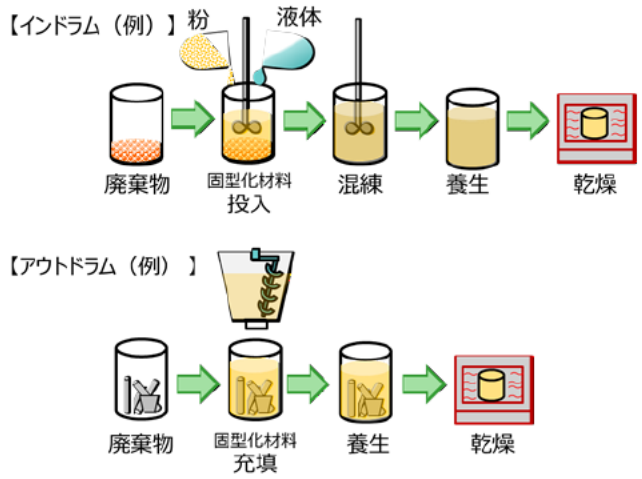


図 4-8 固化手法の種類

(b) 配合例

これまでに無機添加剤含有ジオポリマーの研究開発で検討された配合を表 4-3 に示す。表中③が無機添加剤含有ジオポリマーの配合例である。

配合①、②は、メタカオリン（以下、MK という。）や高炉スラグ微粉末（以下、BFS という。）をベースとして、反応場の水とアルカリ刺激剤で硬化反応が開始するため、混練固化や充填固化への適用を想定して配合の検討を進めてきた。一方で、混練時の混練粘度が短時間で上昇する課題が見られた（Matsuyama et al., 2017）ため、改良手法として乾式手法の開発、無機添加剤による可使時間の延長について検討してきた。湿式手法における粘度上昇対策として添加剤による流動性の改善を検討した結果、ホウ酸の添加（配合③）により一定時間、可使時間を確保できることを確認した（Yuhara et al., 2018；特許第 6926017 号, 2021）。これらの知見から、配合③を無機添加剤含有ジオポリマーのレファレンスの配合として今後検討を進める。

表 4-3 無機添加剤含有ジオポリマーの配合※

種類	MK [wt.%]	BFS [wt.%]	シリカフューム [wt.%]	K_2SiO_3 溶液 [wt.%]	KOH [wt.%]	水 [wt.%]	メタケイ酸ナトリウム九水和物 [wt.%]	ホウ酸 [wt.%]
配合①	31	—	16	12	18	23	—	—
配合②	20	20	9	38	12	—	—	—
配合③	29	—	16	11	18	22	—	5

※有効数字の都合上、配合割合の合計値は 100 にならない

(c)　水素発生挙動

ジオポリマー材料には、混練時の粘度制御と保管時の水素発生挙動の把握という 2 つの課題があり、前者の粘度制御については、無機添加剤としてホウ酸を添加した時の流動性への効果について後述する。ここでは、放射線環境下での無機添加剤としてホウ酸を添加した時の水素発生挙動への影響を調査した結果（赤山ら, 2021）を示す。

照射試験のために、ホウ酸添加量をパラメータとして MK とシリカフューム（以下、SF という。）を添加した基材に K_2SiO_3 水溶液（濃度 30 wt.%）及び KOH のアルカリ刺激剤を混合したジオポリマー固化体を作製した（表 4-3 の配合①と配合③）。照射後、容器上部空隙中の水素濃度をガスクロマトグラフ（Agilent 製 7890A GC system）で測定し、単位試料重量あたりの水素発生速度[mol/ g/ h]を評価した。

照射時間に対する単位試料重量あたりの水素発生量を図 4-9 に示す。配合①（平均細孔径 13.8±0.8 nm）の水素発生速度は$(5.6\pm0.1)\times10^{-8}$ [mol/ g/ h]、配合③（平均細孔径 20.6±0.8 nm）では$(2.3\pm0.1)\times10^{-8}$ [mol/ g/ h]であった。図 4-10 に平均細孔径と水素発生速度の関係を示す。細孔径増大によりジオポリマーからの水素発生速度は低下する傾向が示され、これはフランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）の報告（Chupin et al., 2017）と同様であった。このことからジオポリマーへのホウ酸添加により平均細孔径は増大し、水素発生速度は低下することを確認した。

ジオポリマーへのホウ酸添加が水素発生量の抑制に寄与するメカニズムへのアプローチとして、種々の元素を含むジオポリマー材料への照射試験により、構成元素やジオポリマーの材料物性が水素発生量へ与える影響を検討した（赤山ら, 2023）。ジオポリマーの組成は、表 4-3 の配合③の組成とし、ホウ酸の有無やアルカリ刺激剤中のアルカリ元素の影響を検討した。

ジオポリマーの表面積当たりの付着水量と水素発生量を整理した結果を図 4-11 に示す。表面付着水の増加で水素発生量が増加することを確認した。また、付着水量当たりの水素発生量（直線の傾き）をみると、ホウ酸添加の場合には傾きが小さいため付着水量に対して水素発生量が少なく、Cs 置換で傾きが大きくなり付着水量に対して水素発生量が多くなる傾向であった。これは Co-60 から放出されるガンマ線は、1MeV 以上とエネルギーが高く、元素との相互作用でコンプトン散乱（渡部力, 1966）を起こすため、ジオポリマー構成元素（B、K、Cs）の電子密度の違いにより、外殻軌道電子のはじき出される量に違いが生じ、表面付着水の吸収線量が変化することで、水素発生量が変化したことが要因と考えている。

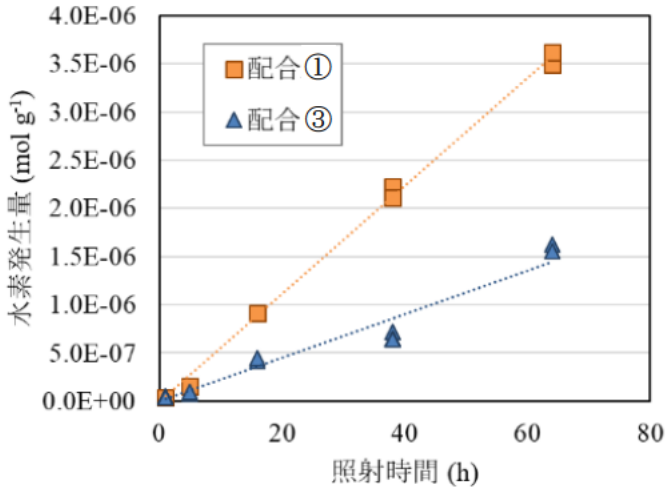


図 4-9　照射時間と水素発生量の関係（赤山ら, 2021）

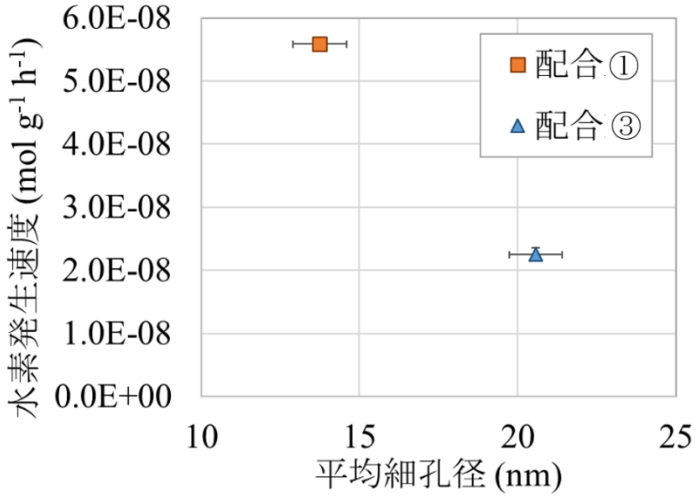


図 4-10　平均細孔径と水素発生速度の関係（赤山ら, 2021）

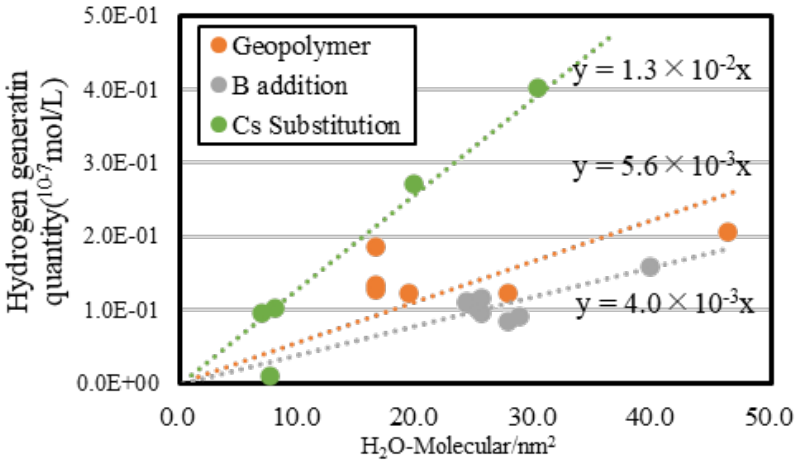


図 4-11　表面積当たりの付着水量と水素発生量の関係（赤山ら, 2023）

(d)　機械的強度

MK や BFS、フライアッシュ（以下、FA という。）などジオポリマーの基材となる材料の配合量を変化させて作製した固化体の一軸圧縮強度を測定した（Yuhara, et al., 2018）。MK または MK の一部を BFS または FA で置換した MK+BFS の配合の一軸圧縮強度の測定結果を図 4-12 に、MK+FA の結果を図 4-13 にそれぞれ示す。なお、MK、BFS 0%及び MK、FA 0%はどちらも表 4-3 の配合①である。結果を見ると、すべての固化体が 29～64MPa と高い一軸圧縮強度を発現することが分かった。一方、BFS や FA の置換率で強度に変化が生じており、配合は機械的強度に影響を与えることを確認した。

次に、ケイ酸ナトリウム溶液（水ガラス）、ケイ酸カリウム溶液、水酸化ナトリウム、水酸化カリウムといったアルカリ刺激剤の組み合わせをパラメータとして作製した固化体の一軸圧縮強度を測定した（Matsuyama et al., 2017）。図 4-14 にアルカリ刺激剤の組み合わせを変えた 50wt.%の炭酸塩スラリーを含むジオポリマー固化体の測定結果を示す。ケイ酸ナトリウム溶液と水酸化カリウムの組み合わせの固化体の一軸圧縮強度が、4 つの組み合わせの中で最も高かった。アルカリ刺激剤の組み合わせの選択が、固化体強度に影響を与えることが明らかになった。

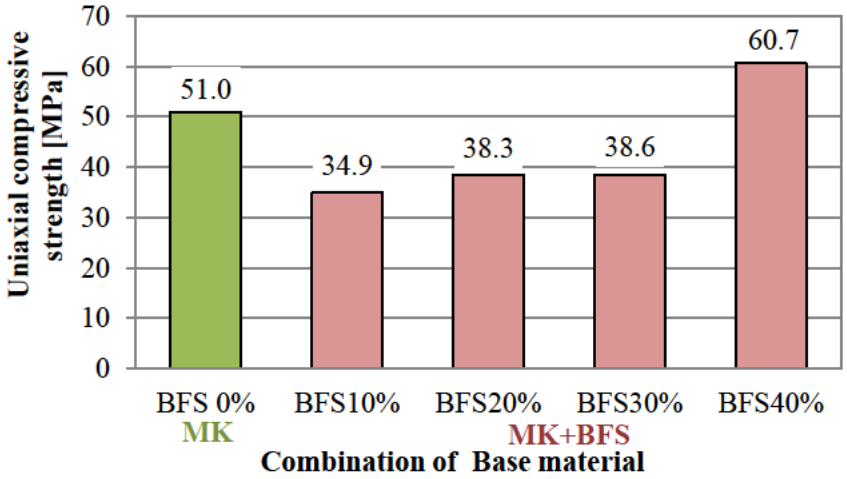


図 4-12　MK+BFS ジオポリマーの固化体の一軸圧縮強度の結果（Yuhara, et al., 2018）

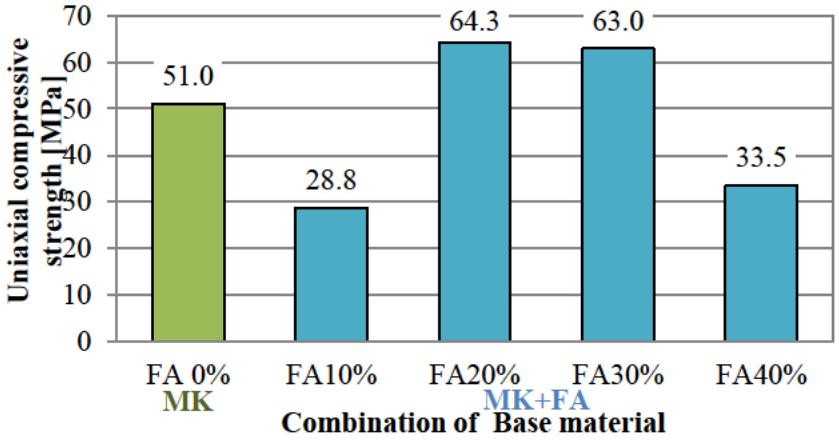


図 4-13　MK+FA ジオポリマーの固化体の一軸圧縮強度の結果（Yuhara, et al., 2018）

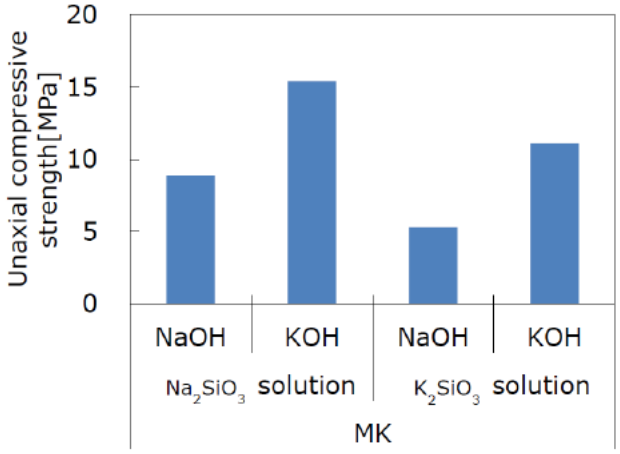


図 4-14　アルカリ刺激剤の組み合わせをパラメータとした固化体の一軸圧縮強度
（50wt.%模擬炭酸塩スラリー添加したジオポリマー固化体）（Matsuyama et al., 2017）

(e)　流動性

混練粘度制御を目的とした配合検討を行い、その流動性を調査した（松山ら, 2016）。図 4-15 に見かけの粘度測定結果を示す。基材の配合を MK のみにした場合は混練直後から高い粘度を示すのに対し、基材に BFS やフライアッシュを添加することで、セメント（水セメント比 0.45）で目安としている粘度（25dPa・s、20℃）以下に抑制可能であることが分かった。そのため、基材の配合調整により粘度抑制が可能であると考えられる。

さらに、原子力発電所で発生する炉内構造物等の高線量廃棄物の充填固化において、セメントの代替固型化材料として、ジオポリマーの混練及び充填中の流動性及び廃棄物間隙の充填性確保を目的とし、無機添加剤による硬化遅延効果について検討した（Yuhara et al., 2018；湯原ら, 2019）。MK をベースに、BFS と SF を添加した基材に、K_2SiO_3 水溶液（濃度 30 wt.%）と KOH を混ぜたアルカリ刺激剤を加えて混合し、ジオポリマー混練物（ペースト）を作製し、見かけ粘度の時間変化を円筒形回転粘度計により測定した。図 4-16 に無機添加剤として、K_2SiF_6、Mg_2SiF_6、K_2HPO_4、H_3BO_3 を添加した時の見かけ粘度の経時変化を示す。また、図 4-17 に K_2SiF_6、Mg_2SiF_6、H_3BO_3 を添加した時の添加剤種類と低粘度維持時間の関係を示す（一部データ重複）。無添加（BFS40）と比較して、Mg_2SiF_6 や K_2HPO_4 を添加した場合には低粘度維持時間が短くなり、K_2SiF_6 と H_3BO_3 を添加した場合には低粘度維持時間が長くなる結果が得られた。特に H_3BO_3 は低粘度維持時間が無添加と比較して 10 倍以上延長でき、十分な可使時間を確保できた。

そこで、ホウ酸添加量の最適範囲を調べるために、ペーストに外割 1～5 wt.%の H_3BO_3（ホウ酸）を加え、見かけ粘度の時間変化を測定した。図 4-18 にホウ酸添加した場合の MK＋BFS ジオポリマーペーストの見かけ粘度の経時変化を示す。ホウ酸濃度 5 wt.%では、低粘度維持時間は十分確保できるものの、ホウ酸濃度 1wt.%以下では、低粘度維持時間が 30 分以下と短く、ホウ酸の硬化遅延効果が表れないことが明らかになった。ホウ酸濃度 5wt.%のスラリー中での硬化遅延の要因を調べるため、スラリー中の Ca 濃度を測定した。図 4-19 にホウ酸 5wt.%添加した場合と、無添加の場合のスラリー中の Ca イオン濃度の経時変化を示す。ホウ酸を添加すると、スラリー中の Ca イオン濃度が上がらず、低い状態で維持されることが分かった。そのため、ホウ酸によりスラリーの Ca 濃度が抑制されることで、カルシウムの水和反応が妨害され、硬化遅延が生まれていると考えられる。また、7.5 wt.%以上ホウ酸を添加すると硬化しないという結果が得られており（湯原ら, 2019）、ホウ酸添加量を 5wt.%に設定している。

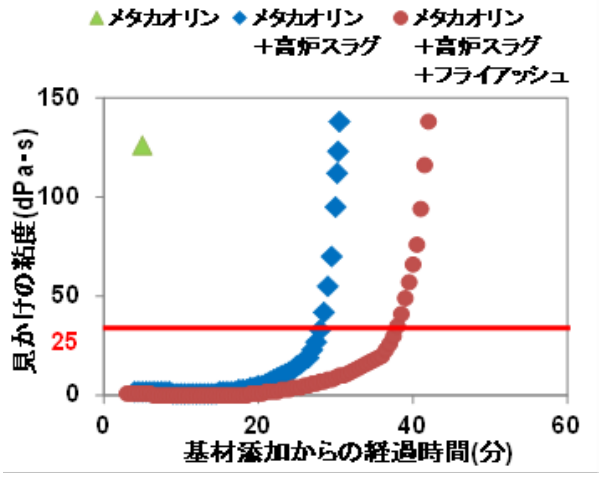


図 4-15　各配合での見かけ粘度経時変化（模擬炭酸塩スラリー50wt.%添加）
（松山ら, 2016）

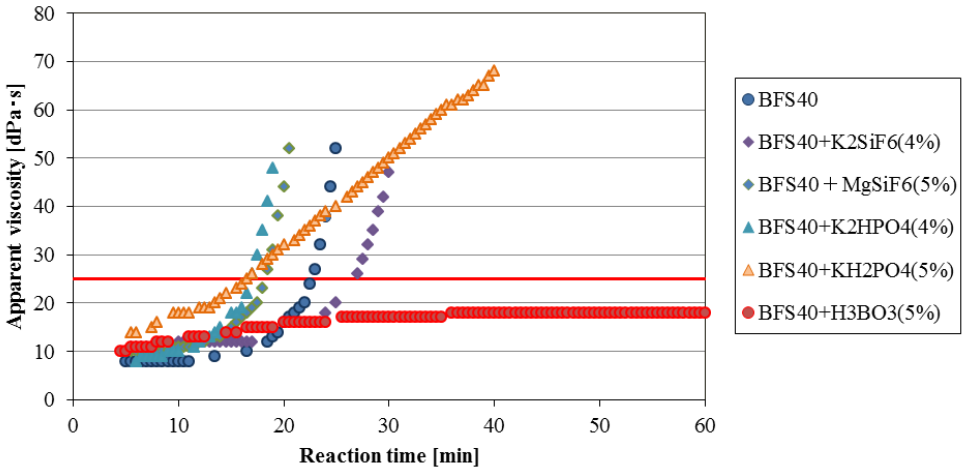


図 4-16　MK＋BFS ジオポリマーペーストの見かけの粘度の経時変化
（Yuhara et al., 2018）

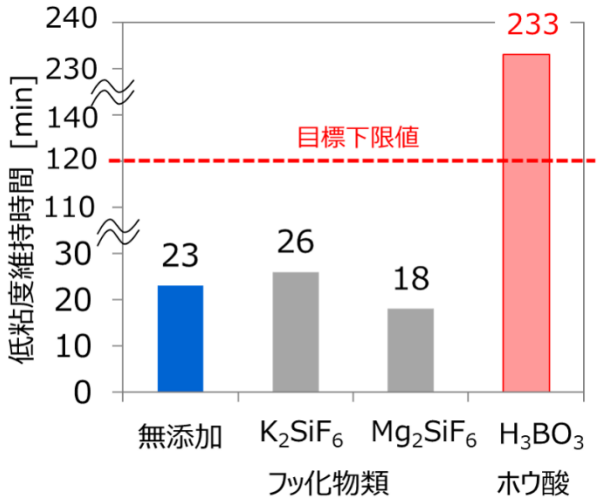


図 4-17　添加剤種類と低粘度維持時間の関係（湯原ら, 2019）

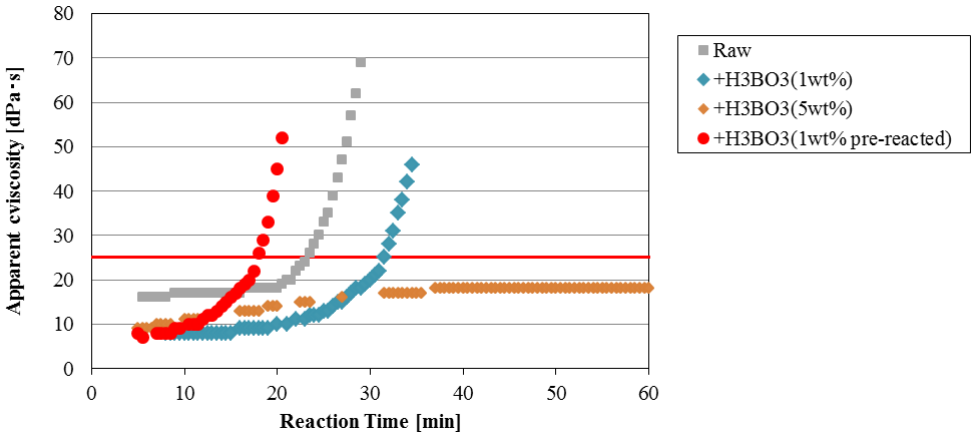


図 4-18　ホウ酸添加 MK＋BFS ジオポリマーペーストの見かけの粘度の経時変化
（Yuhara et al., 2018）

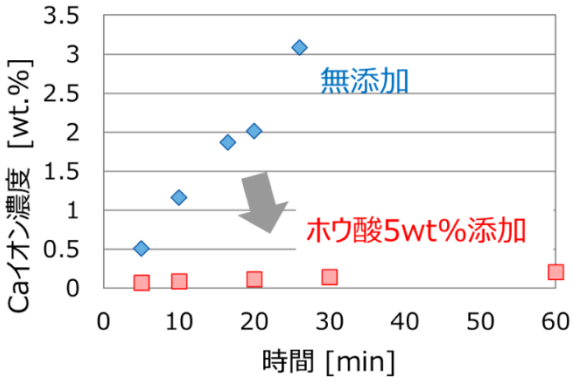


図 4-19　スラリー中の Ca イオン濃度の経時変化（湯原ら, 2019）

(f)　ガス発生量低減化のための改良ポイント

ここではまず、水の放射線分解により生成する水素ガスの発生要因として、直接影響と間接影響の２つの考え方について説明をする。図 4-20 左図に放射線入射に伴う水素発生過程の概要を、図 4-20 右図に直接影響と間接影響の考え方に関する模式図を示す。低含水率の固相を想定した場合には、固相に対して水相の割合が極めて低いため、固相経由の間接影響についても考慮しておく必要がある。そのため、ここでは直接水相が受けたエネルギーから水素が生成することを①水に対する直接影響、固相が受けたエネルギーが水相に伝播して水素が生成することを②固相を経由した間接影響と呼ぶことにする。具体的には図 4-20 右図に示すように、固化体中に含まれる放射性廃棄物から放射線が放出され、照射されると放射線のエネルギーは固型化材料に付着、または包含されている自由水である水相に吸収され（①）、水の放射線分解が起こり、水素ガスが発生する。また、固型化材料（固相）にも放射線のエネルギーが吸収されるが、高いエネルギーの放射線が照射された場合には、固相の構成元素中の電子がコンプトン散乱によりはじき出され、一部は水相へエネルギーが伝播し（②）、水の放射線分解により水素ガスが発生すると考えている。

放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良に向けた計画の概要を表 4-4 にまとめた。各項における施策と狙い、期待している効果の項目で整理した。固相からの間接影響の低減として、（１）無機添加剤の種類や量をパラメータとして調整し、軽元素のジオポリマーの配合を検討すること、（２）温度や雰囲気の制御により、ジオポリマーの微細構造（比表面積等）の物性を変化させることを施策として考えている。（１）軽元素ジオポリマーの配合検討の狙いは、全体の電子密度を小さくすることであり、その理由としては、高いエネルギーの放射線が固相に照射されると、構成元素中の外殻軌道電子と衝突して、コンプトン散乱により電子がはじき出され、その電子のエネルギーが水相中へ伝播した場合に、放射線分解により水素が発生するが、固化材料の構成元素に軽元素を選択し、電子密度を小さくすることで、この確率を減らし、間接影響の低減に繋がると考えているからである。（２）ジオポリマーの微細構造等の物性を変化させる狙いは、ジオポリマーの比表面積を変化させることであり、その理由としては、比表面積や細孔径などの微細構造と水素発生量の挙動には相関がある（Chupin et al., 2017）と考えられるからである。

水相（直接影響）の低減としては、（１）骨材を多孔質の材料（シャモット等）に変える等により、中心部からの脱水経路を確保して、乾燥効率化を検討すること、（２）固化体の大きさをパラメータとして、表面積と体積が異なる条件で乾燥処理の速度を求め、スケールアップの際の処理条件を検討することで、乾燥処理の条件の最適化を図ることを施策として考えている。（１）中心部からの脱水経路確保の狙いは、含水率の低減と乾燥処理の効率化が期待できると考えている。（２）乾燥処理速度の取得の狙いは、乾燥条件の最適化であり、熱や時間の効率化の観点で重要

であると考えている。また、充填固化体の形状として 200L ドラム缶を想定しているものの、基礎試験の段階ではビーカースケール試験を実施する計画としており、スケールアップの影響の事前検討しておく必要がある。

表 4-4　無機添加剤含有ジオポリマーの改良のポイント

項目		施策	狙い	期待している効果
固相	（1）	無機添加剤の種類や量をパラメータとして調整し、軽元素のジオポリマーの配合を検討	全体の電子密度を小さくする	②固相からの間接影響の低減
	（2）	温度や雰囲気の制御により、ジオポリマーの微細構造（比表面積等）の物性を変化させる	ジオポリマーの比表面積を変える（または添加剤により結晶化温度が変化するため、低温で結晶化できないか）	②固相からの間接影響の低減
水相	（1）	骨材を多孔質の材料（シャモット等）に変えることにより、中心部からの脱水経路を確保して効率化へ	含水率の低減と乾燥の効率化	①水相（直接影響）の低減
	（2）	固化体の大きさをパラメータとして、表面積と体積が異なる条件で乾燥処理の速度を求め、スケールアップの際の処理条件を検討	乾燥処理の条件の最適化	①水相（直接影響）の低減

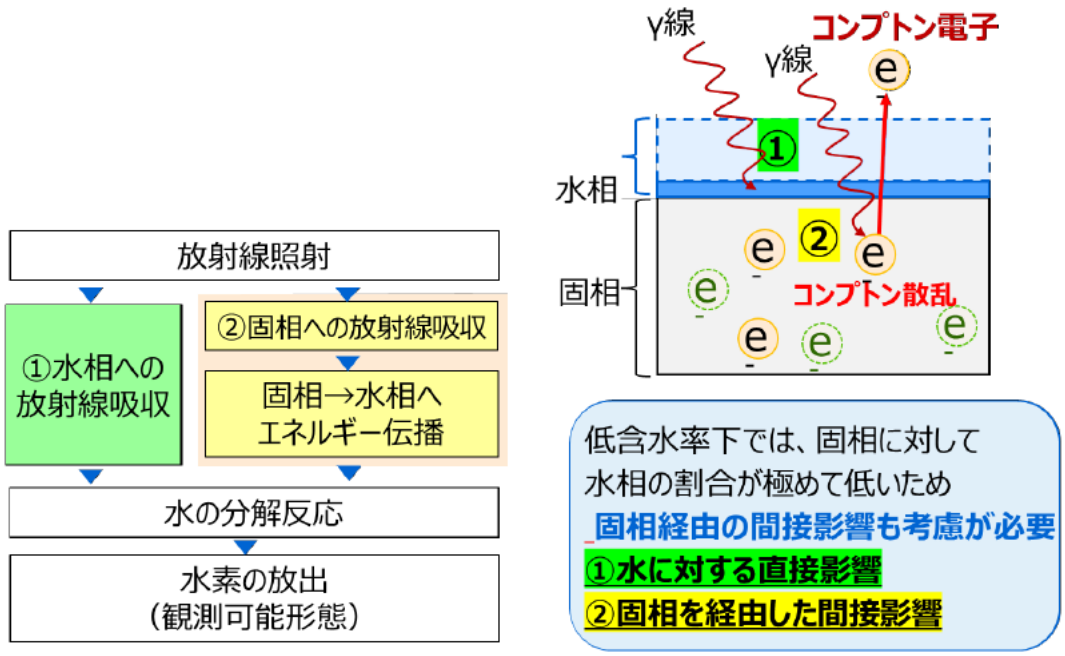


図 4-20　放射線入射に伴う水素発生過程（左図）と直接影響と間接影響の考え方に関する模式図（右図）

表 4-4 の改良のポイントに基づく試験計画を以下にまとめる。なお、改良試験については、次年度から着手する。

1. 配合及び添加剤の検討

（1）軽元素のジオポリマーの配合検討

極低含水率の固相からの間接影響の低減を目的として、ジオポリマー試料全体の電子密度を小さくするため、無機添加剤の種類や量をパラメータとして配合検討を行う。無機添加剤の選定基準としては、高 pH 領域（アルカリ性）で溶解する化合物で、メインの構成元素である Si や Al よりも原子番号の小さい軽元素を含む化合物を想定しており、添加することで電子密度を小さくする可能性のあるものを選定する。

（2）微細構造の調整のための配合検討

ジオポリマーの微細構造（比表面積等）等の物性を変化させるため、処理温度や雰囲気等の条件を検討する。低粘度維持時間の延長を目的として添加している無機添加剤として添加したホウ酸添加剤により、結晶化温度が変化したことから、添加剤の種類と処理条件の関係も調査する。

2. 乾燥処理方法の検討

（1）脱水経路の確保

骨材としてこれまで 5 号珪砂を用いていたが、例えば多孔質の材料（シャモット等）等への変更により、中心部からの脱水経路を確保し、乾燥処理が効率的に実施できるかを確認する。ただし、多孔質材料を骨材として添加する場合には、骨材の水の吸収による混練粘度上昇が懸念されるため、置換率をパラメータとする等、変更の影響と効果のバランスを確認しながら、適用を検討する。

（2）乾燥処理の速度の取得による処理条件の検討

固化体の大きさをパラメータとして、表面積と体積が異なる条件で乾燥処理の速度を求め、スケールアップの際の処理条件を検討する。今年度実施した熱分解によるガス発生挙動の結果から、乾燥処理のための加熱により、材料から水が生じることもあるため、乾燥処理による水の除去については、常圧での加熱以外の方法も視野に検討していく必要があると考えられる。また、どちらの試料も水と接触した際、アルカリ性を呈するため、空気中の水を吸湿する可能性があり、乾燥処理後の取り扱いについても今後検討する。

②　ガス発生挙動に係わる物性データの取得

ガス発生に係る特性、水・ガス等の物質移行に関わる物理特性および固型化材料そのものの安定性等に関わる化学特性のデータ等を室内試験や分析により取得する。比較としてセメントについても同様の分析を実施する。

(a)　固化体の熱分解に伴うガス発生挙動

上記の乾燥処理方法の検討の試験計画を具体化するために、固化体の熱分解に伴うガス発生挙動を EGA-MS（加熱発生ガス-質量：Evolved Gas Analysis-Mass）分析により調査した。EGA-MS 分析では、電気炉で試料を昇温したときに生じるガスを MS で検出し、質量スペクトルと温度の関係を取得出来る。目的としては、自由水とその他の形態で含まれる水の熱分解挙動の把握、セメントとジオポリマー試料の熱分解で発生するガス挙動の把握、乾燥試験の条件検討に向けた乾燥温度の設定のバックデータの取得が挙げられる。

また、ダイナミック TG（試料制御熱重量：Thermogravimetric）分析により、試料の重量変化を調べた。ここでは擬等温熱重量測定（ダイナミック法）により重量減少速度に応じて温度を制

御しながら試料の重量減少率を測定した。目的は、自由水とその他の形態で含まれる水の熱分解挙動の把握、ジオポリマーとセメント試料の熱分解に伴う重量挙動の把握、乾燥試験の条件検討に向けた乾燥温度の設定のバックデータの取得が挙げられる。

セメントとジオポリマーの固化体試料について、EGA-MS 分析により取得した加熱により生じるガス発生挙動と、ダイナミック TG 分析により取得した高い温度制御精度の重量減少トレンドの結果を合わせることで、常圧で乾燥処理する場合の水を除去可能の目安となる乾燥温度を設定することを目的とした。試験条件は次の通りとした。なお、以降の配合 C、配合 D は、表 4-3 の配合①、配合③と同じである。分析試料は粉砕後の固化体粉末を篩で分級し、75μm 以下とした粉末を使用した。

○EGA-MS 分析の試験条件

試料種類：セメント試料（1 種類：配合 A（混和剤あり））
ジオポリマー試料（1 種類：配合 D（ホウ酸あり））
試料の配合比は表 4-5（セメント試料）、表 4-6（ジオポリマー試料）

使用原料：

セメント試料

セメント（一般社団法人セメント協会、研究用セメント）、骨材（5 号珪砂、山川産業社、掛津産）、化学混和剤（ポリカルボン酸系：マスターグレニウム SP8SV）

ジオポリマー試料

メタカオリン（「METAMAX」、BASF 製、ドイツ）、シリカフューム（「EFACO」、エジプト）、30wt.%K_2SiO_3 溶液（164-26655、和光純薬株式会社、日本）、KOH（168-21815、和光純薬株式会社、日本）、ホウ酸（021-02195、和光純薬株式会社、日本）、骨材（5 号珪砂山川産業社、掛津産）

測定装置（加熱炉）：EGA/PY-3030D（フロンティア・ラボ製）
測定装置（MS）：GCMS QP-2010 Ultra（島津製作所製）
EGA チューブ：不活性化キャピラリー　内径 0.15nm、長さ 2.5m
加熱条件（加熱炉）：昇温速度 10℃/min、 50～1000℃
注入口、チューブ温度（MS）：300℃
雰囲気：He ガス
試料量：約 9mg
イオン化法（MS）：電子イオン化（EI）
選択イオン：

指定成分	選択イオン（m/z 値）
H_2O	18
CO_2	44
O_2	32
SO_2	64
H_2	2
N_2（参考表示）	28

○ダイナミック TG 分析の試験条件

試料種類：EGA-MS 分析と同じ試料
セメント（1 種類：配合 A（減水剤あり））
ジオポリマー（1 種類：配合 D（ホウ酸あり））
試料の配合比、原料は EGA-MS 分析の対象試料と同じ
測定装置：STA200RV 型（日立ハイテクサイエンス製）
加熱条件：昇温速度 10℃/min、 室温～980℃（擬等温熱重量測定のため約 1000℃）
擬等温熱重量測定…物理量の変化速度がある上限値を上回った時は昇温を止めて一定温度制御に入り、下限値を下回った時は昇温を再開するという温度制御
雰囲気：N_2 ガス（流量 200mL/min）
試料量：約 5mg
質量変動のしきい値：上限値 20μg/min、下限値 15μg/min

EGA-MS 分析の結果（全域）を図 4-21（セメント試料）、図 4-23（ジオポリマー試料）に示す。セメント試料は約 800℃まで、ジオポリマー試料は約 600℃まで H_2O が発生しており、どちらの試料も H_2O が発生ガスの大部分を占めている。セメント試料は $Ca(OH)_2$ の脱水により生じた水由来のピークを 380℃～450℃に確認した。水以外の発生ガスの挙動が見えにくいため、図 4-22（セメント試料）、図 4-24（ジオポリマー試料）に縦軸強度を 90000 カウントまでの表示として、図 4-21、図 4-23 と同じ結果について微量成分を拡大して表示している。両試料とも、O_2 については空気成分の N_2 と発生挙動が類似しているため、残存空気の可能性が高いと考えられる。セメント試料については、650℃付近から $CaCO_3$ の脱炭酸反応によりに CO_2 の発生が見られ、780℃付近（710℃～970℃）でセメント由来の SO_2 ガスの発生が確認できた。ジオポリマー試料については、350℃付近で CO_2 の発生が確認された。350℃付近の CO_2 は、$KHCO_3$ 由来と推定している。アルカリ刺激剤の KOH が空気中の二酸化炭素と反応して $KHCO_3$ が生じ、これが 292℃で分解して CO_2 が発生するためである。その他、今回指定したガスについては発生しないことを確認できた。表 4-7 に EGA-MS 分析のピーク面積値を示す。ほぼ同量の試料からの結果であることから、セメント試料の方が CO_2（約 2 倍）と SO_2（約 140 倍）のガス生成量が多いことが分かる。

TG 分析の結果を図 4-25、図 4-26 に示す。TG 分析による重量減少率はセメント試料が 18.4%、ジオポリマー試料が 9.2%という結果になった。加熱による重量減少の全てが指定した 6 成分のガスとなって放出されると仮定すると、表 4-7 の EGA-MS 分析のピーク強度比から、セメント試料の含水率は 16.6%と算出でき、温度域 50℃～770℃で放出され、ジオポリマー試料の含水率は 8.8%と算出でき、温度域 50℃～600℃で放出されるという結果となった。セメント試料については、含水率 16.6%の内、重量減少の温度域 380℃から、結合水が約 5.8%、自由水が約 10.8%と考えられる。ただし、試料調整の際、骨材の珪砂を篩により除去しているため、後述の照射試験の含水率と必ずしも一致しない。ジオポリマー試料については全て自由水である。その他のガスについては、水と比較して発生量は微量ではあるが、セメント試料から CO_2 が温度域 480℃～1000℃で 2.9[mL/g-試料]発生し、SO_2 が温度域 710℃～970℃で 1.2[mL/g-試料]発生する。またジオポリマー試料についても同様に CO_2 が温度域 180℃～720℃で 0.9[mL/g-試料]発生し、SO_2 が温度域 600℃～720℃で 5.4×10^{-3}[mL/g-試料]とジオポリマー試料から SO_2 ほぼ発生しないという結果が得られた。

この結果から、常圧で加熱して乾燥処理する場合には、水の発生がなくなる温度域、セメント試料では 770℃、ジオポリマー試料では 600℃とどちらの試料も高温で加熱する必要が出てくる。本分析には、常圧で乾燥処理する場合の水を除去可能の目安となる乾燥温度を設定する目的もあ

ったが、昇温に伴いどちらの試料も高温まで水が発生し続けるため、この分析結果のみからでは乾燥温度の設定には至らなかった。

一方、セメント試料の 400℃付近のように、温度を上げることで $Ca(OH)_2$ が分解するように、加熱により材料から水が発生することもある。そのため乾燥処理による水の除去については、水の存在形態とその形態が加熱や放射線により分解するのかを確かめることが重要であることが分かった。今後乾燥処理条件を検討する際、追加の分析等を行い確認する必要がある。また、常圧で加熱以外の乾燥処理方法も視野に検討していく必要があると考えられる。さらに、どちらの試料も水と接触した際、アルカリ性を呈するため、空気中の水を吸湿する可能性があり、乾燥処理後の取り扱いについても検討の必要がある。加熱に伴うガス発生については、セメント試料では 780℃付近で二酸化硫黄の生成があるため、700℃以上に加熱温度を設定する場合には、排気系統の設計の際には材料選定等の検討が必要であることが分かった。

表 4-5　セメント試料の配合比※

配合	セメント [wt.%]	骨材(S)※※ [wt.%]	化学混和剤 [wt.%]	水 [wt.%]
配合 A	29	58	0.25	13

※有効数字の都合上、配合割合の合計値は 100 にならない

※※75 μm 以下の粉末試料を分析に用いたため、分級により骨材を除いている

表 4-6　ジオポリマー試料の配合比

配合	MK	SF	アルカリ刺激剤		水	ホウ酸	骨材(S) ※※※
			K_2SiO_3 溶液	KOH			
	[wt.%]	[wt.%]	[wt.%]	[wt.%]	[wt.%]	[wt.%]	[wt.%]
配合 D	12	7	5	8	9	2	57

※※※75 μm 以下の粉末試料を分析に用いたため、分級により骨材を除いている

表 4-7　EGA-MS 分析のピーク面積値

成分	ピーク面積（×10^6）	
	セメント試料	ジオポリマー試料
H_2O	4183.1	3470.7
CO_2	285.0	136.6
O_2	-	-
SO_2	173.3	1.2
H_2	-	-
合計	4641.5	3608.5

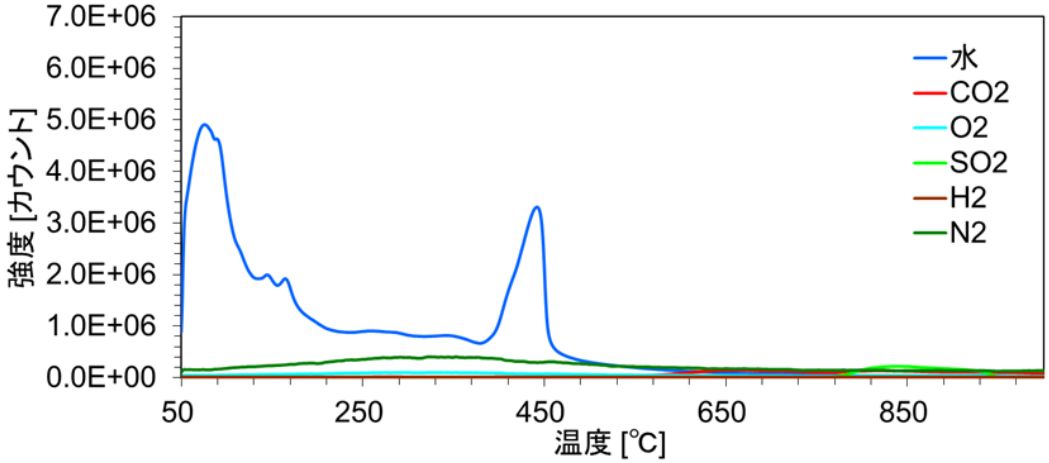


図 4-21　セメント試料の EGA-MS 分析の結果（全域）

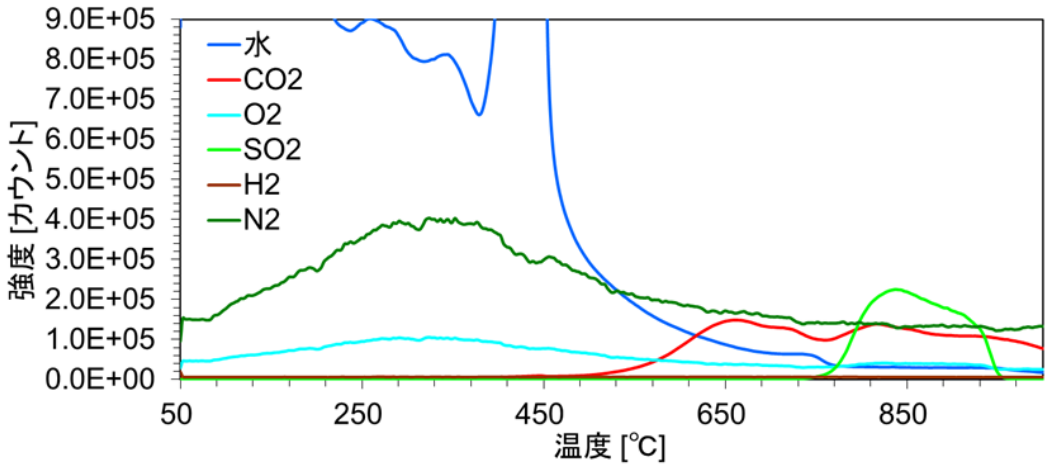


図 4-22　セメント試料の EGA-MS 分析の結果（詳細：縦軸～90000 カウント）

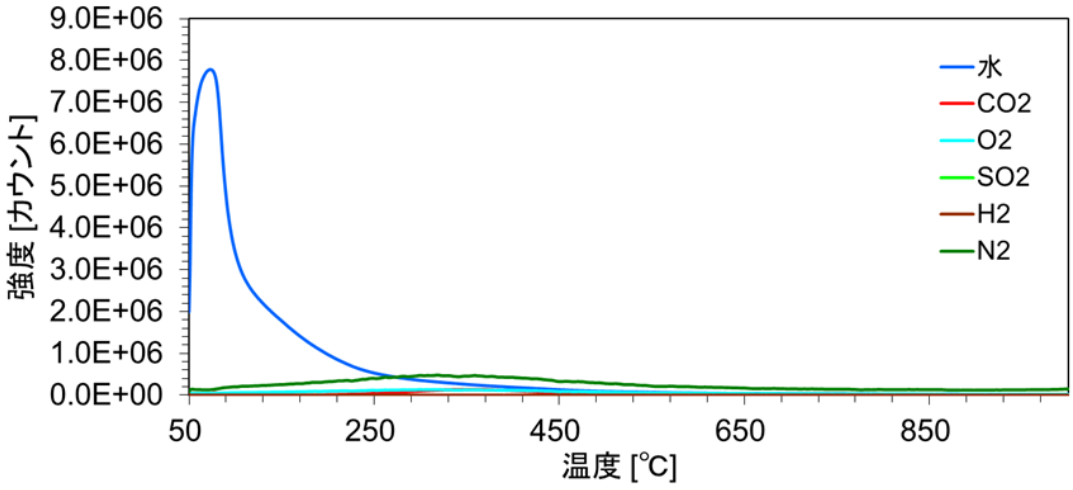


図 4-23　ジオポリマー試料の EGA-MS 分析の結果（全域）

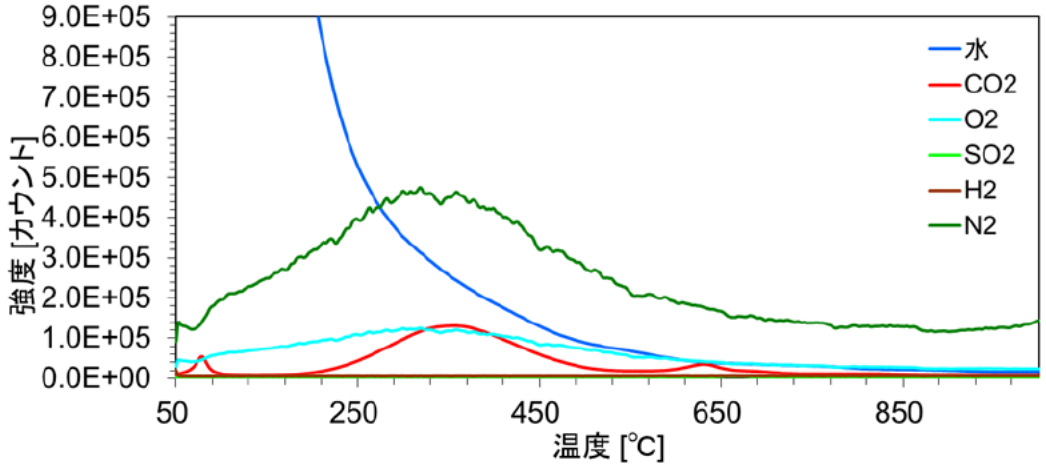


図 4-24　ジオポリマー試料の EGA-MS 分析の結果（詳細：縦軸～90000 カウント）

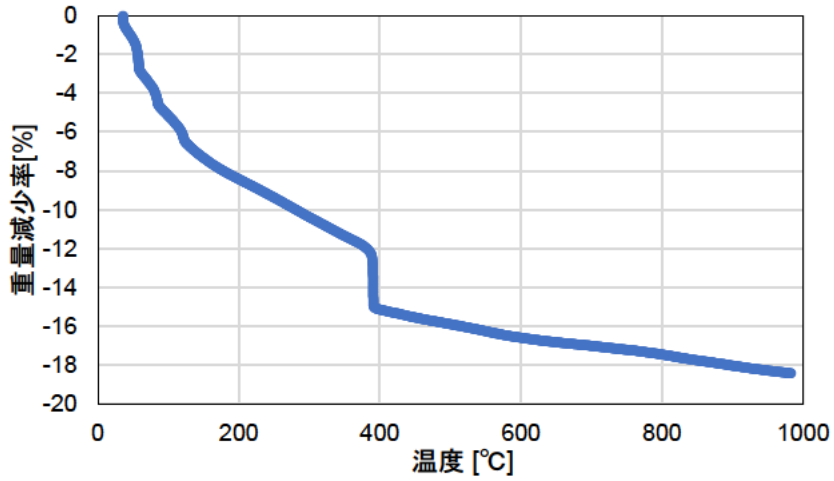


図 4-25　セメント試料の TG 分析の結果

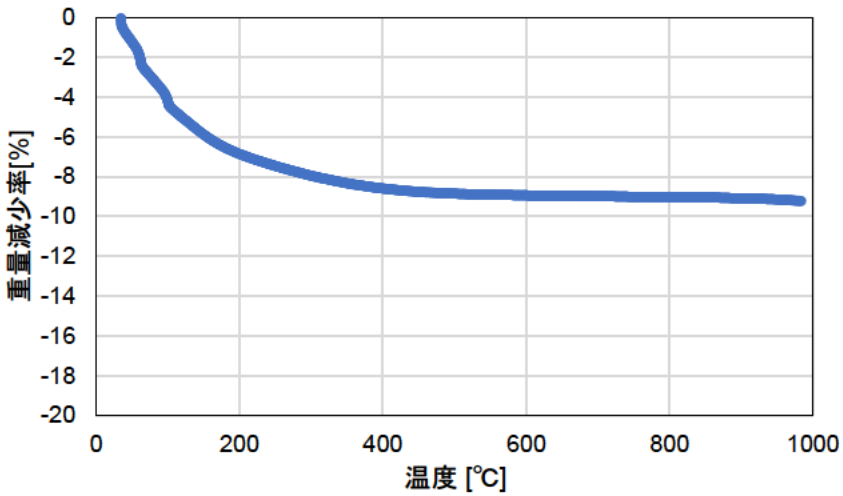


図 4-26　ジオポリマー試料の TG 分析の結果

(b)　水素発生量（見かけの水素発生 G 値）の現状値の取得

無機添加剤含有ジオポリマー材料からの水素ガス発生挙動の現状値を把握するため、水素発生量を取得した。さらに、リファレンスであるセメントの値と比較するために同様の条件で水素発生量を取得して比較を行った。照射試料は、セメント試料は化学混和剤の添加有無で組成の異なる 2 種類とし、ジオポリマー試料はホウ酸の添加有無で組成の異なる 2 種類の計 4 種類とした。照射試料の作製条件は次の通りとした。照射試料の作製および照射試験までのフローを図 4-27 に示す。試料は水素等発生ガスの放出を阻害しないよう粉砕し、篩を用いて 75μm 以上 850μm 以下に調整した。5 号珪砂が含まれるよう篩の目開きの上限を設定し、乾燥処理は行わず成り行きの含水率とした。

○照射試料の作製条件

試料種類：セメント（2 種類）、ジオポリマー（2 種類）

配合条件：セメント試料は表 4-8

ご提示頂いた条件：H31 年度 OPC－M-PC　配合 A（参考文献[26]）

R2 年度 2)-⑪　配合 B（参考文献[27]）

配合比：セメント試料は表 4-9

ジオポリマー試料は表 4-10

試料重量当たりの含水比 0.13 を合わせて、配合の W/C（水セメント比）及び S/C（骨材セメント比）を調整しており、有効数字の都合上、配合割合の合計値はちょうど 100 とならない。

養生条件：温度 20℃、封緘養生、材齢 28 日

混練は水にセメント、アルカリ刺激剤にメタカオリンなど、液体に粉末材料を少しずつ投入した後、骨材を少しずつ投入して行い、材料混合後、混練開始から 30 分混練した様子をカメラで撮影し、45 分経過したところで、モールドへ充填した。その際、混練物の一部について円筒形回転粘度計（ビスコメータ VT-06、リオン株式会社製）を用いて粘度を測定した。混練は常温で実施した。混練の様子を図 4-28 に、混練時の粘度及び固化体の含水率の結果を表 4-11 に示す。

試料重量当たりの含水比を合わせて調整した配合で混練をしたところ、混和剤を配合していないセメントの配合 B は骨材を半分入れたあたりから粘度が非常に高くなり、容器を抑えても撹拌翼の回転で容器ごと回転してしまう状況になった。骨材を全量入れると固まったように撹拌翼が動かなくなったため、手で混ぜるようにしたが、撹拌機で混練するほどは十分混練出来ていない。非常に粘度が高く、円筒形回転粘度計の測定を試みたがローターが回転せず、150dPa・s 以上とエラーになり、測定はできなかった。その他の配合は、セメントの配合 A とジオポリマーの配合 C の粘度が 60 dPa・s 程度と 1L 規模であれば混練可能であった。しかし 200L ドラム缶など大規模での混練の場合には、撹拌翼の形状や混練力など、混練方法の検討が必要な可能性がある。

一方、ホウ酸を添加しているジオポリマーの配合 D の粘度は 25dPa・s 程度と低い結果となった。充填固化の固型化材料としては、有害な空隙を低減するために雑固体廃棄物とドラム缶の間の隙間を埋める必要があるため、混練及び充填などハンドリングの間、低粘度を維持しなくてはならないが、ホウ酸を入れることで低粘度を維持できる時間を最低 45 分は確保できていることを確認した。今後の水素発生量低減の改良において、配合中の水分量を減らすこと等の配合変更により粘度が上昇してしまう可能性があるため、改良の後、混練粘度への影響を確認しておく必要がある。

45 分混練後の試料をモールドへ移し、養生した後、JIS A1108「コンクリートの圧縮強度試験方法」に準拠して一軸圧縮強度試験を行い、材齢 28 日の固化体強度を測定した。測定には、油圧

ターボ式圧縮試験装置 SV-50Ts（丸東製作所製）を用いた。固化体の一軸圧縮強度測定の結果を表 4-12 に、固化体の様子を図 4-29 に示す。固化体の 28 日強度は 30～51MPa と、高い強度発現を確認した。セメント配合 B の試料の強度が低い理由は、混練物の流動性がなく混合が十分に進まなかったため、混練不足が要因である可能性が高いと考えている。

【照射試験】

照射試験は国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構、高崎量子応用研究所の第二 Co-60 照射施設にて実施した。照射試験用に図 4-30 に示すような金属バルブを有するガラスの照射容器を作製した。容器は真空配管用ガラスアダプタ（キャノンアネルバ社製 952-7822）をガラス細工で容器形状とし、気密性を担保する構造とした。放射線照射での劣化を考慮し、樹脂の部品を含まないようバルブやガスケットなどガラス以外の部分はすべて金属製のものを使用し、ステンレス製の支持台にバルブ付き容器を設置し照射を行った。照射の様子を図 4-31 に示す。照射線量率は、試料を設置した照射位置に応じて変化するため、照射と同時にアミノグレイ測定を行い、吸収線量率（水換算）を測定した実測値を用いた。試験は、線源側面から照射容器中心までの距離を出来るだけ近づけて設置し、照射時間は照射設備のインターバルの影響を極力受けないように、16、38、64 時間に設定した。照射容器内を不活性雰囲気とするため、照射容器への試料充填をアルゴンガス雰囲気のグローブボックス内で行った。また、グローブボックスへ入れる際の雰囲気置換の際の含水率変動を考慮して、照射後の試料の含水率を測定することとした。

照射容器内の気相の水素濃度の測定は、照射容器を図 4-32 に示す水素サンプリング系に繋ぎ、測定容器のサンプリングロからガスタイトシリンジでサンプリングした気体をガスクロマトグラフに注入して行った。水素濃度の測定後、再びグローブボックス内で分取した固相の含水率の測定をカールフィッシャー水分率測定法により実施した。また窒素ガス吸着法による比表面積及び細孔径分布測定を実施し、固化体の細孔直径や細孔容積などの微細構造情報を取得した。測定条件は次の通りとした。

○γ線照射試験の条件

線量率： 5.3～7.7kGy/h（実測値）
照射時間：16、38、64 時間
試料の種類：4（セメント（2 配合)、ジオポリマー（2 配合））
試料量：5g
N 数：2（容器破損により N 数 1 になったものが 1 点あり）

○水素濃度の測定条件

測定装置：ガスクロマトグラフフ GC-8A（島津製作所製）
カラム温度：180℃　　検出器：TCD （200℃）
試料注入量：1 ml　　キャリアガス：アルゴン
検量線：水素濃度 100ppm～1%（H_2-Ar 混合ガス）

○含水率測定条件（照射後の試料）

測定装置：電量滴定式カールフィッシャー水分計（京都電子工業製）
本体 MKC-710　水分気化装置 ADP-611
滴定用試薬（Honeywell 製）：ハイドラナールークーロマット AK（陽極液）
ハイドラナールークーロマット CG-K（陰極液）

加熱温度：200℃
窒素流量：200mL/min
加熱時間：20 分

○細孔径分布及び比表面積の測定条件
分析方法：N_2 ガス吸着法による比表面積・細孔径分布測定
装置：比表面積・細孔径分析装置　QUADRASORB evo （Quanta Chrome Co.製）
前処理：室温（25℃）で 12 時間以上真空脱気
測定原理：定容法
吸着ガス：窒素ガス
測定温度：77.35K（-195.8℃）
セルサイズ：標準セル（ステム外径 9mm）
測定項目：任意測定点の吸着／脱着等温線
解析項目：BET 多点法による比表面積、全細孔容積、平均細孔直径
BJH 法による細孔径分布（メソポア領域）

図 4-33 に集積線量に対する照射容器内の水素濃度の関係を示す。照射容器内の水素濃度については、集積線量が増加するに伴い、照射容器内の水素濃度が上昇する傾向を確認した。図 4-34 に集積線量に対する試料 1g あたりの水素発生量の関係を示す。セメント A と B の試料に対して、ジオポリマーC と D の試料の傾き（見かけの水素発生 G 値：固化体の吸収線量に対する水素ガス発生量）が大きく、セメントよりもジオポリマー試料の方が、水素発生量が多く、ホウ酸添加の影響も見られないという結果になった。ただし、この評価は試料の含水率を試料重量に包含して評価しており、材料の違いを直接比較することができない。含水率と水素発生量は比例することが知られている（Chupin et al., 2017 ; Lambettin et al., 2013）ため、材料の違いだけでなく、含水率の違いがこの水素発生量の傾きに影響していることを考慮しておく必要がある。また、本試験では乾燥処理を行わず、成り行きの含水率としたため、水相の直接影響が強く出てしまい、固相からの間接影響は見えなかった。

表 4-13 に本試験で取得した各配合の平均含水率、水素発生量と水素ガス発生量の結果を示す。表中のセメントとジオポリマー試料の水素発生量の差をみると、1.8～2.2 倍程度、ジオポリマー試料の方が、水素発生量が多い。しかし、この評価に含まれていない含水率を比較してみると、平均値がセメントで 7.2 wt.%、ジオポリマーで 11.2wt.%であり、1.4～1.7 倍程度ジオポリマー試料の方が高いため、この含水率の差が大きく影響していると考えている。一方、ジオポリマー試料の配合 C と D の含水率を比較すると、含水率が水素発生量に比例する場合には、配合 D の方が 1.2 倍大きいはずだが、水素発生量の結果は同じ値になっている。そのため、直接影響の自由水（含水率）で整理すると、ホウ酸を添加しているジオポリマー配合 D の方が、水素発生量が小さくなることが期待できる。
図 4-35 に試料の含水率と水素発生量の関係を示す。含水率に対する水素発生量の傾きを見ると、セメント B の傾きが最も小さく、次にセメント A、ジオポリマーD、ジオポリマーC と大きくなる順番だった。このことから、ホウ酸添加による水素発生量低減の効果が表れていることを確認できたが、ジオポリマーD はばらつきも大きいため、やはり高含水率の試料においてはその効果は見えにくくなっている。また、各配合における含水率と水素発生量が比例関係にあることも確認できた。

表 4-14 にガス吸着法による比表面積・細孔径分布測定結果を、図 4-36 に表面積当たりの水分量と水素発生量の関係を示す。表面積当たりの水分量は、図 4-36 の含水率の結果と表 4-14 の比表面積の結果から算出した。結果を整理してプロットしたところ、ジオポリマーC と D を比較すると、無機添加剤としてホウ酸を添加したジオポリマー試料 D からの水素発生量は、添加していない C と比較して小さくなり、ホウ酸添加の効果を確認することができた。また、図 4-35 の含水率のみでの整理した場合と比較して、横軸の水分量に対するプロット位置の傾向に違いはないものの、近似線の傾きに関して、セメント A、B が重なり、差が見えにくくなった。今回対象とした試料比表面積に大きな違いはなかったことから、含水率の影響が大きく表れたことが要因で、固型化材料特有の材料の違いが見えにくくなったと考えている。乾燥処理により付着水を低減することで直接影響を減らし、固型化材料特有の間接影響が表れて固型化材料の違いが評価できると考えている。

今後検討を計画している微細構造、比表面積等の物性を調整した試料について、照射試験を行う場合には、今回の照射試験の結果も併せて評価を実施していく予定である。

表 4-8　セメント試料の配合条件

配合	試料名	配合条件					
		セメント (C)	骨材 (S)	化学混和剤	S/C (重量比)	W/C※ (重量比)	含水量比 (重量比)
配合 A	H31 年度 OPC－M-PC	OPC	珪砂	C×0.85 mass%	2	45	0.13
配合 B	R2 年度 2)-⑪	OPC	珪砂	-	3	60	

※試料重量あたりの含水量比 0.13 に合わせて W/C を調整

表 4-9　セメント試料の配合比

配合	試料名	配合条件※※					
		セメント(C) [wt.%]	骨材(S) [wt.%]	化学混和剤 [wt.%]	水 [wt.%]	S/C (重量比)	W/C※ (重量比)
配合例 A	H31 年度 OPC－M-PC	29	58	0.25	13	2	0.45
配合例 B	R2 年度 2)-⑪	22	65	-	13	3	0.60

※試料重量あたりの含水量比 0.13 に合わせて W/C を調整
※※有効数字の都合上、配合割合の合計値は 100 にならない

表 4-10　ジオポリマー試料の配合比

配合	MK [wt.%]	SF [wt.%]	アルカリ刺激剤		水 [wt.%]	ホウ酸 [wt.%]	骨材(S) [wt.%]	S/C※※ (重量比)	W/C※ (重量比)
			K_2SiO_3 溶液 [wt.%]	KOH [wt.%]					
配合 C	12	6	5	7	9	0	60	2.2	0.46
配合 D	12	7	5	8	9	2	57	1.9	0.42

※セメントの配合条件を参考に試料重量あたりの含水量比 0.13 に合わせて W/C を調整
※※メタカオリンとシリカフュームなど固形分の合計をセメント（C）として換算

表 4-11　混練時の粘度及び固化体の含水率

試料種類	配合	粘度※ [dPa・s]	固化体含水率※※ [wt.%]
セメント	配合 A	60	8.6
	配合 B	150 以上でエラー	8.5
ジオポリマー	配合 C	58	13
	配合 D	25	15

※　材料混合後、45 分経過時の混練粘度（円筒形回転粘度計）

※※　28 日養生後、120℃までの重量減少を水分として算出

表 4-12　一軸圧縮強度試験の結果

試料種類	配合	一軸圧縮強度[MPa]
セメント	配合 A	50.7
	配合 B	29.6
ジオポリマー	配合 C	50.1
	配合 D	43.2

表 4-13　各配合の平均含水率、水素発生量と水素ガス発生量の結果

試料種類	配合	含水率 平均値 [wt.%]	水素発生量 見かけの G 値(H_2) [10^{-7}mol/J]	水素ガス発生量 平均値 [μmol/g/kGy]
セメント	配合 A	7.2	0.068	0.0068
	配合 B	7.1	0.055	0.0055
ジオポリマー	配合 C	10.4	0.12	0.012
	配合 D	11.9	0.12	0.012

表 4-14　各配合のガス吸着法による比表面積・細孔径分布測定結果

試料種類	配合	平均細孔直径※ [nm]	全細孔容積※※ [cc/g]	比表面積[m^2/g] BET 多点法
セメント	配合 A	5.32	0.0382	28.7
	配合 B	5.70	0.0513	36.0
ジオポリマー	配合 C	10.4	0.0853	32.9
	配合 D	12.9	0.109	33.6

※　細孔構造が円筒形と仮定して全細孔容積と比表面積の値から算出

※※　細孔が液体窒素により充填されていると仮定して、P/P_0=0.99 での吸着ガス量から計算

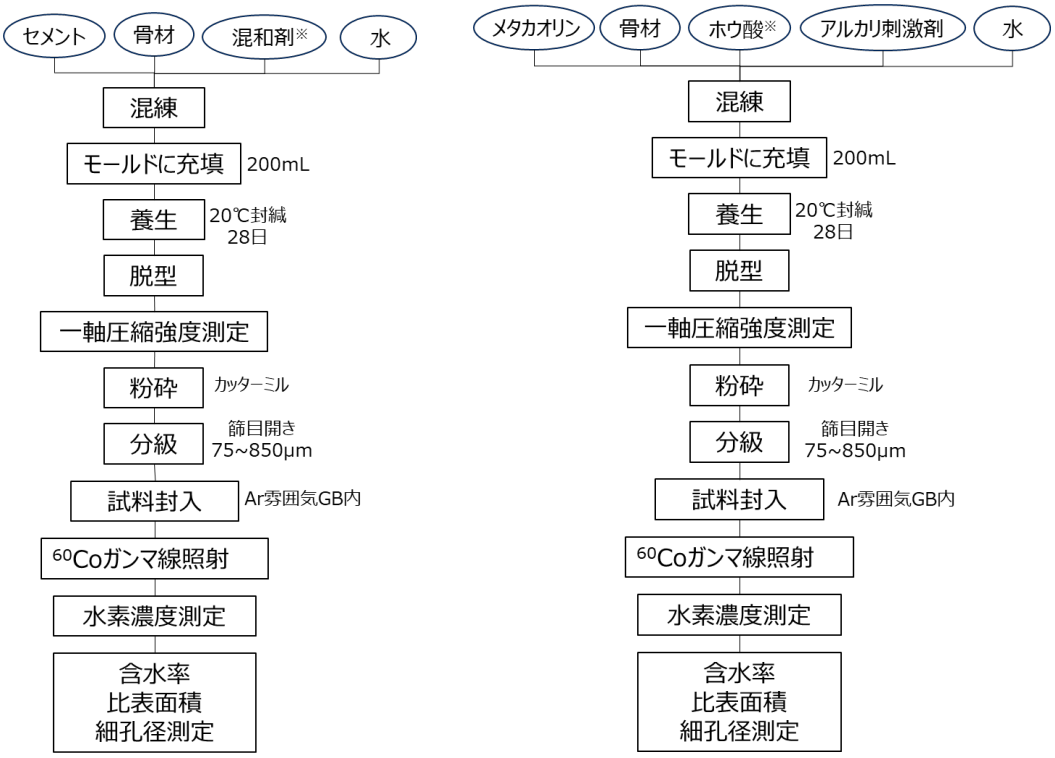


図 4-27　照射試料の作製及び照射試験のフロー

（左：セメント試料、右：ジオポリマー試料）

化学混和剤及びホウ酸は配合によっては含まない場合もある

図 4-28　混練時の様子

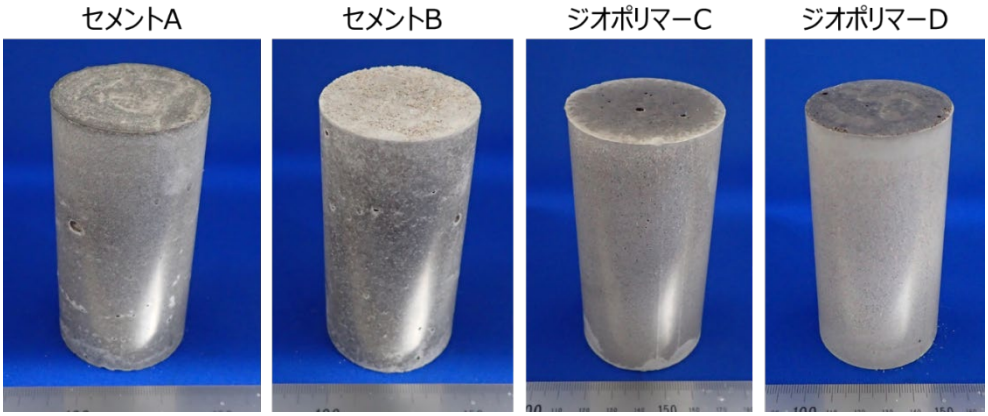


図 4-29　固化体の様子

図 4-30　照射容器

図 4-31　照射の様子

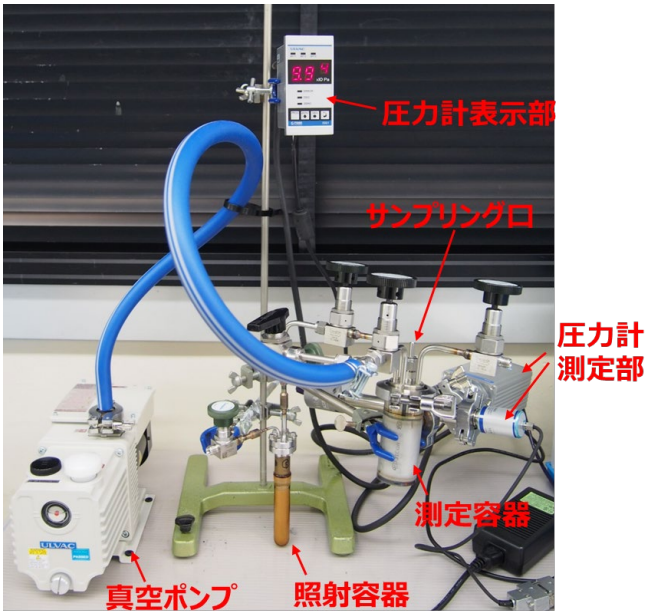


図 4-32　水素サンプリング系

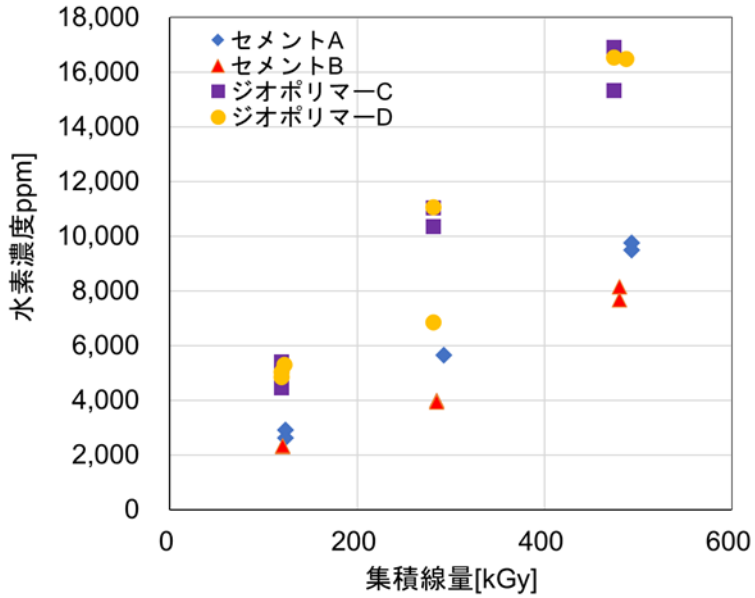


図 4-33　集積線量に対する水素濃度の関係

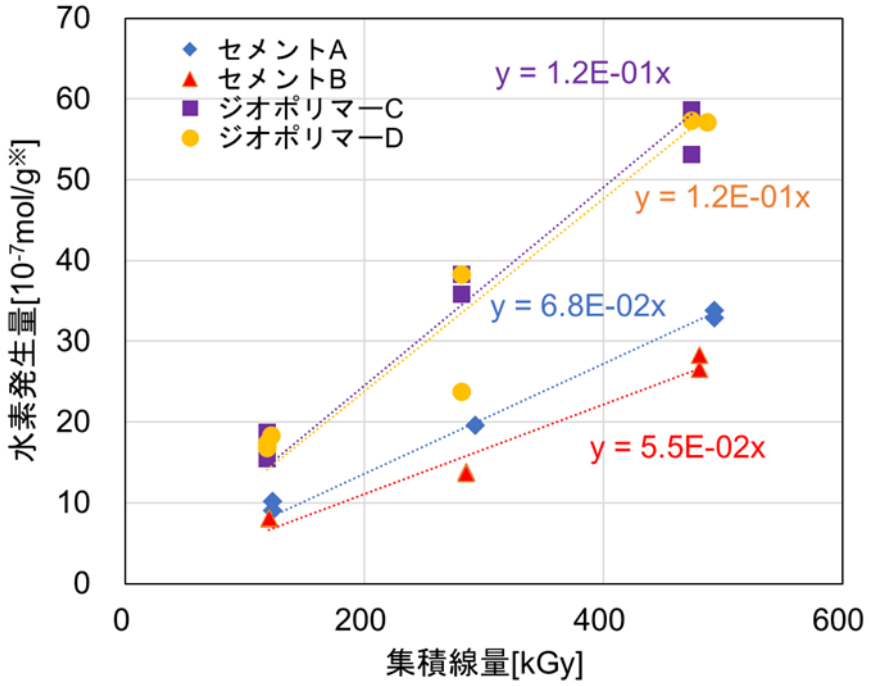


図 4-34　集積線量に対する水素発生量の関係
（※含水している試料 1g あたりの水素発生量で評価）

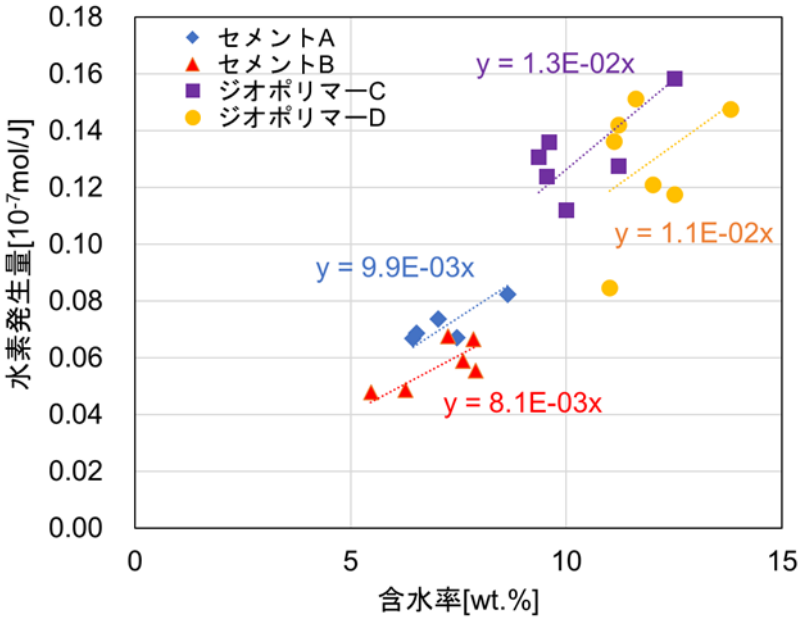


図 4-35　試料の含水率と水素発生量の関係

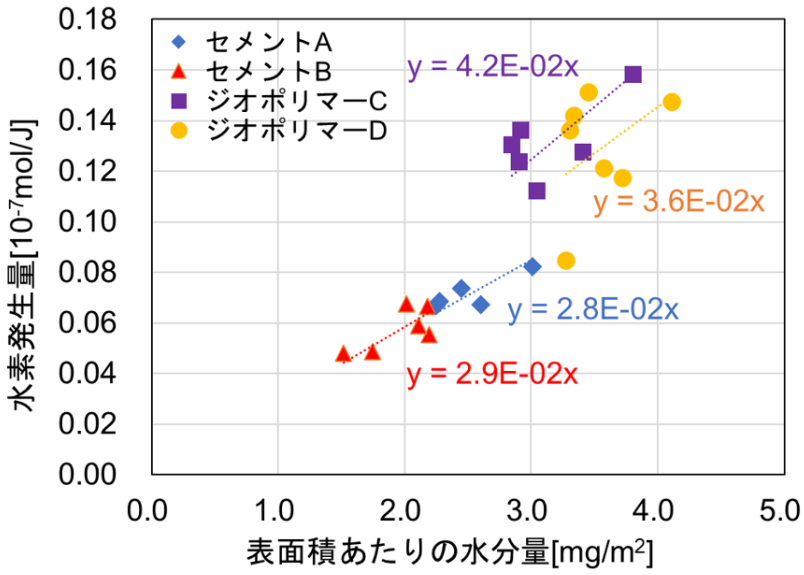


図 4-36　表面積あたりの水分量と水素発生量の関係

2)　分散剤添加高炉スラグジオポリマー

分散剤添加高炉スラグジオポリマーは、粒子分散効果のある混和剤（添加剤）によって硬化前の流動性と保持性を高め､水以外の方法で反応を制御し､混練水の添加量を抑制するものである。この固型化材料の特徴を表 4-15 に示す。なお、このジオポリマーには鉄鋼生産の副産物である高炉スラグ等を用いることができ、コストの削減や CO_2 排出量の低減も期待される。

表 4-15　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの特徴

	分散剤添加高炉 スラグジオポリマー	一般的なジオポリマー	セメント／モルタル
固化前の流動性	高い	低い（即時硬化）	高い
強度	高い 20～70 MPa	10～20 MPa	高い 例えば 20～70 MPa
硬化の養生方法	大気養生で可	多くが蒸気養生必要 （工場処理）	大気養生が大半
含水率 （モルタルベース）	低い	高い、10～20%	多くが 8%以上

①　固型化材料の基本特性とガス発生量低減化のための改良ポイントの整理

(a)　固化方法

分散剤添加高炉スラグジオポリマーも無機添加剤含有ジオポリマーと同様に、材料の混合時に練り混ぜ水を加える湿式手法で養生する。(b) に示すレファレンスの配合では以下の手順で固化処理を行う。

高炉スラグ等の活性フィラーをミキサーに投入し 20 秒間混錬。

↓

アルカリ活性剤→水 20%→分散剤→水 80%の順で投入。

↓

混錬後、室温で封緘養生。

分散剤添加高炉スラグジオポリマーもセメント固化設備と同様の工程、設備を想定しており、その後の乾燥処理で固化体の含有水を低減させることを考えている。

(b)　配合例

分散剤添加高炉スラグジオポリマーの基本配合を表 4-16 に示す。活性フィラーとしてだけでなく、細骨材にも高炉スラグを利用する。また、特殊混和剤は分散剤とアルカリ活性剤を足し合わせたものであり、この特殊混和剤により練り混ぜ水を抑制することが可能で、ガス発生に係る自由水の低減の観点でその効果を期待している。

表 4-16　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの基本配合

種類	高炉スラグ	フライアッシュ	シリカフューム	高炉スラグ細骨材	特殊混和剤＋水
高炉スラグGP(湿式) (基本配合)	35			55	10

(c)　機械的強度

上記の基本配合で室温で封緘養生した固化体の一軸圧縮強度の測定結果を図 4-37 に示す。養生 7 日後には 40MPa を超える一軸圧縮強度を発現することを確認している。

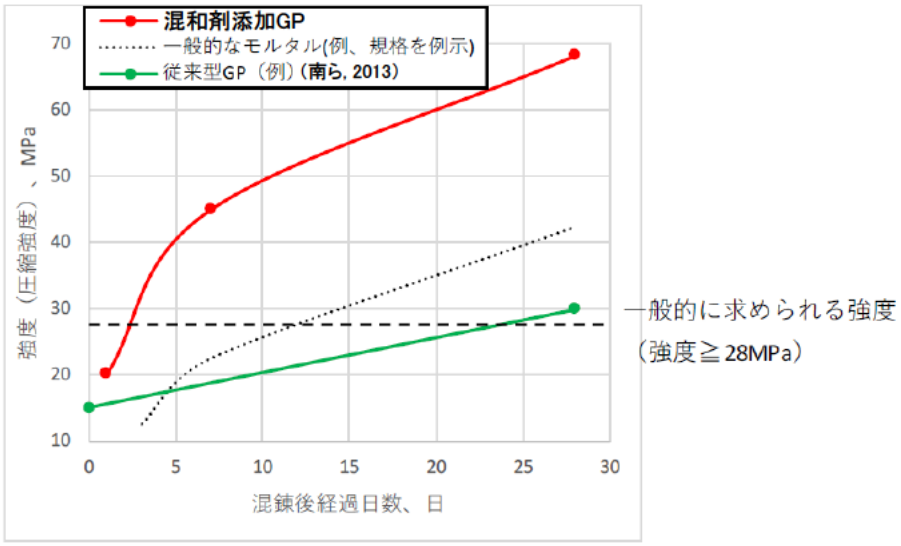


図 4-37　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの一軸圧縮強度の混錬後の推移
（神戸製鋼, 2021）

(d)　流動性

基本配合の分散剤添加高炉スラグジオポリマーのフロー試験（分散剤添加高炉スラグジオポリマー）の結果を図 4-38 に示す。粒子分散効果のある混和剤（添加剤）によって硬化前の流動性と保持性（可使時間）が向上することを確認した。

この混和剤の効果から、水以外の方法で反応を制御することで、混練水の添加量の抑制を図ることが、ガス発生量を低減させるための改良ポイントの一つであると考えている。

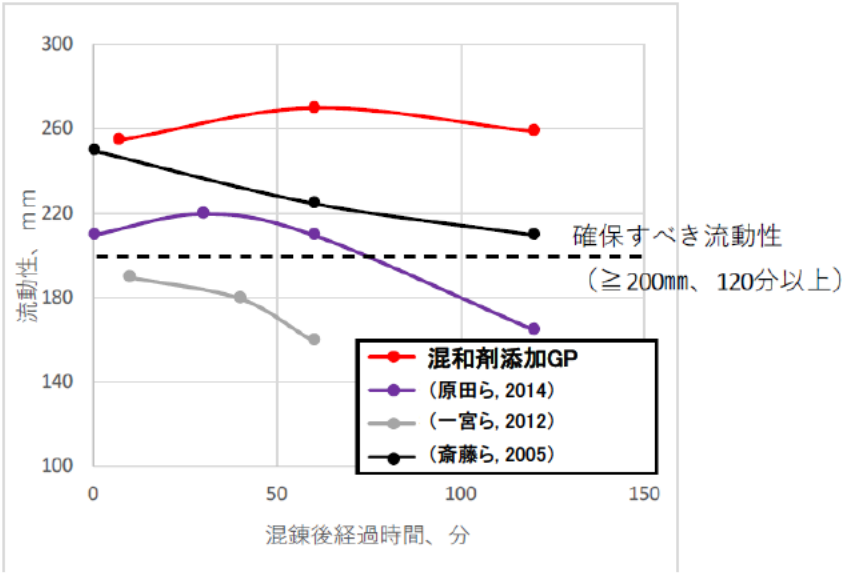


図 4-38　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの流動性における混錬後の時間推移
（神戸製鋼, 2021）

(e)　ガス発生量低減化のための改良のポイント

分散剤添加高炉スラグジオポリマーでは、自然乾燥/加温乾燥等の乾燥方法に寄らず、配合時の水分を減らすことがガス発生量低減化において最も効果があると考えている。また、水素発生に寄与する水分形態（水和物種など）や固化体の構造や水分分布を解析（例えば、中性子を使った三次元解析など）により把握することも重要である。

これらの改良のポイントに基づく試験計画を以下にまとめる。

1. 練り混ぜ水の低減
   アルカリ活性剤（水溶液）の改良等により、必要最低限の強度を確保しつつ混錬時水分を低減する方法を把握する。
2. 水分存在形態とガス発生量の関係の把握
   配合が及ぼす水分存在形態を把握して、照射試験による水素発生量との関係を評価する。
3. 乾燥条件の検討
   固化体全体を均質に乾燥させる技術について､乾燥条件を変えた試験等を実施して検討する。

②　放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良

固型化材料（ジオポリマー）の改良を検討するにあたり、物性データの目標値を表 4-17 に示す。

表 4-17　ジオポリマーの物性データの目標値

項目	目標値
水分量	5%以下（セメント以下）※
流動性	200 mm 以上を 120 分以上保持※※
一軸圧縮強度	1.47MPa 以上（埋設、セメント固化体） （マクロに）均質であること

※普通ポルトランドセメントや高強度高緻密コンクリートの水分量が 5%弱（原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2022）であることから、これを目安の目標値として設定。

※※（JIS R5201:2015）

(a)　ジオポリマーの自然乾燥と水分量測定

使用した原料の種類を以下に示す。

- フライアッシュ
- 高炉スラグ微粉末、JIS A 6206　高炉スラグ微粉末 4000 相当（製品名：K メント）
- 高炉スラグ細骨材、JIS A 5011-1 BFS2.5 相当（製品名：シンコーサンド）
- アルカリ活性化剤
- 分散剤：粒子分散剤（反応遅延剤）
- シリカフューム
- 混練水

試験体は容積 1.5 L のモルタルミキサー（図 4-39 左写真）で混錬した。

混錬した試験体は、直径 50 mm、高さ 100 mm の円柱供試体に打設した。上記供試体は、室温で乾燥機等を使用することなく自然乾燥させた（図 4-39 右写真)。

図 4-39　容積 1.5 L のモルタルミキサー（左）と供試体の自然乾燥の様子（右）

分散剤添加高炉スラグジオポリマーの水分測定結果を図 4-40 に示す。水分測定は、AND 社製 MS-70 の赤外式水分測定器を用いた。

自然乾燥により水分は 28 日で 2～4%程度減少することが分かった。

また、別途打設していた大型のジオポリマーブロックについて、約 1 年以上経過したものを切り出し計測したところ、水分値は 2%程度になることも分かった（表 4-18）。

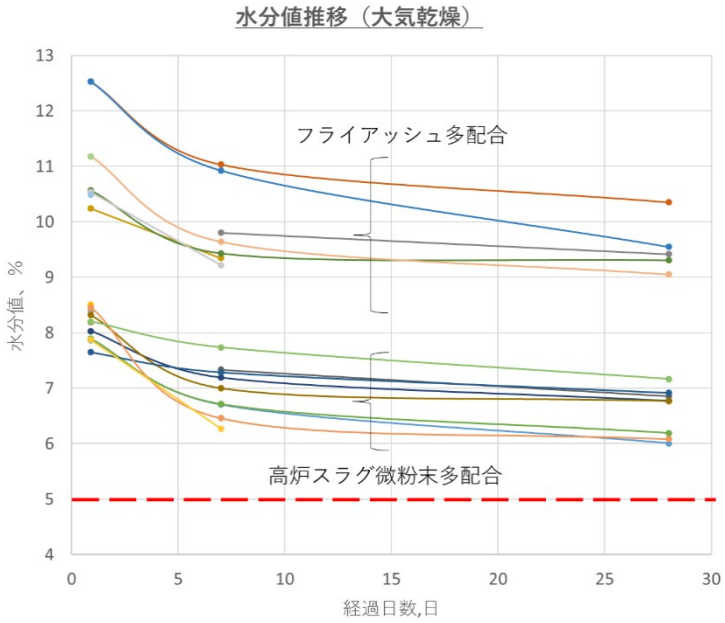


図 4-40　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの水分測定結果

表 4-18　約 1 年経過後の代表的な配合のジオポリマーサンプルの水分測定結果

[単位：%]

サンプル名	①	②	水分
KAA3	2.1	1.9	2.0
KAA5	2.7	2.7	2.7
KL13	2.2	2.2	2.2

今後、後述の流動性と強度（現在、特に強度が過剰である）を満足する範囲内で、アルカリ活

性剤や添加水等、初期の配合水分値を下げる配合をさらに検証していく。

(b)　流動性の測定

JIS5201：2015 に準拠して、分散剤添加高炉スラグジオポリマーの流動性を測定した。測定結果を図 4-41 に示す。また、測定の様子を図 4-42 に示す。

分散剤の効果で、流動性は 150 mm 以上と高く、かつ少なくとも 30 分以上の時間を保持する配合がほとんどであることが分かる。また、多くの配合が 120 分程度初期と同様の流動性を示している。配合によっては 60 分以降に流動性が上がるものもある。

流動性の目標値については、200 mm 以上を 120 分以上保持、としていたが、本検討の実プロセスを鑑みると 120 mm 程度以上を 60～120 分程度でも十分な保持性を担保できる可能性もあり、今後、工学試験を実施しながら決定すべきと考えられる。

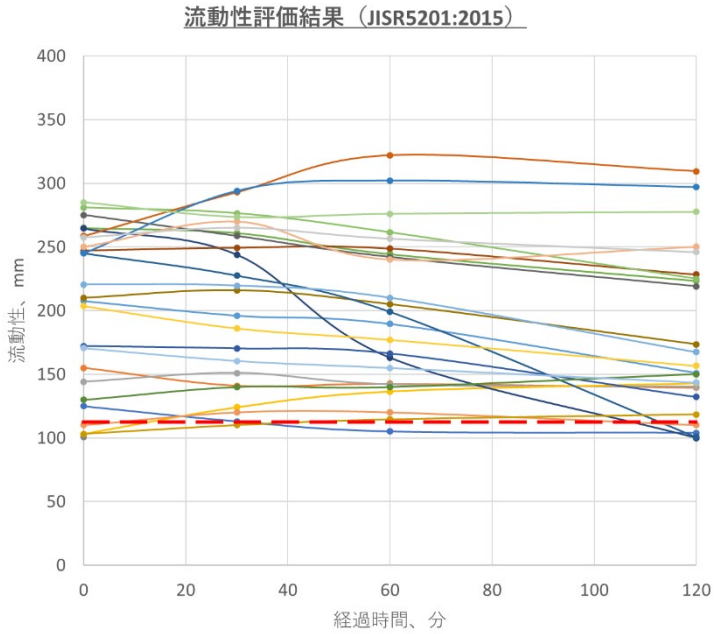


図 4-41　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの流動性測定結果

図 4-42　流動性測定の様子

(c)　一軸圧縮強度の評価

JISA1108:2018 に準拠して、分散剤添加高炉スラグジオポリマーの一軸圧縮強度を測定した。測定結果を図 4-43 に示す。また、測定の様子を図 4-44 に示す。

当初設定した目標は 1.47 MPa 以上（埋設、セメント固化体）であり、いずれの配合も強度はこれを満足している。今後、水分量削減に繋がるアルカリ活性剤（水溶液）の低減を重点的に検証していく。

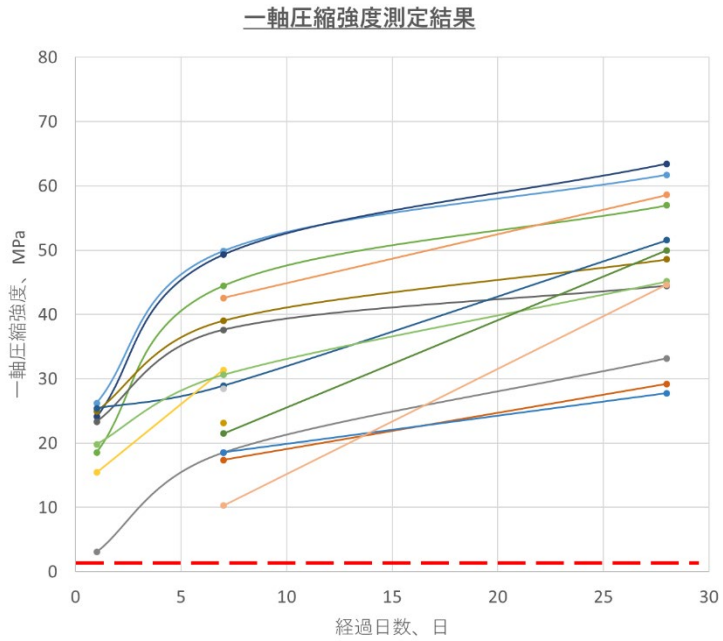


図 4-43　分散剤添加高炉スラグジオポリマーの一軸圧縮強度測定結果

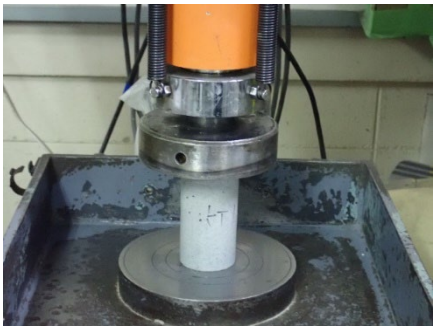


図 4-44　一軸圧縮強度測定の様子

3)　乾式ジオポリマー

アルカリ刺激剤に水和物を含む粉末を用いることで(混練)水の添加を抑制することができる。これはタイル等の建材分野における水和物を用いる方法（吉元ら, 2017）から着想を得たものである。セメントは水和反応により固化するが、ジオポリマーは脱水縮重合するため、原理上、硬化するための水が不要となることから、ガス発生量低減の観点で放射線分解に寄与する固化体中の水分量も減らせることを期待している。

①　固型化材料の基本特性とガス発生量低減化のための改良ポイントの整理

(a)　固化方法

乾式ジオポリマーは材料の混合時に練り混ぜ水を使わない材料に含まれる固体の結晶水を加熱により融解させて反応を進める乾式手法で固化する。水分配合量を極小化することによる乾燥工程の入力エネルギーの低減や湿式手法で留意が必要な混練時の粘度制御が不要といった特色がある。乾式ジオポリマーは以下の手順で固化処理を行う

Al_2O_3 を SUS 製容器に入れて、$Na_2SiO_3 \cdot 9H_2O$ を少量ずつ加えながら、混合機で塊状の物が無くなるように約 5 分混合。

↓

加熱温度（加熱開始後 1 時間は 60℃）、加熱時間 65h で混合した原料を固化するとともに水分を除去。

(b) 配合例

これまでの検討した乾式ジオポリマーの配合を表 4-19 に示す。これは、ジオポリマー材料としてメタケイ酸ナトリウム九水和物（$Na_2SiO_3 \cdot 9\,H_2O$）とアルミナ（Al_2O_3）を混合し、硝酸塩廃液を処理して発生する炭酸ナトリウム（Na_2CO_3）を模擬廃棄物として、50 wt%混合したものである。

材料の混合比はどの条件も同じで、これを基本配合とする。

表 4-19 乾式ジオポリマーの配合と固化処理条件の例

項目		条件 1	条件 2	条件 3
混合比 [wt%]	$Na_2SiO_3 \cdot 9\,H_2O$	37	37	37
	Al_2O_3	13	13	13
	Na_2CO_3（模擬廃棄物）	50	50	50
加熱温度［℃］		55	55 （加熱開始後 1 時間は 60℃）	55
加熱時間［h］		65	65	65
蒸発抑制蓋		有り	有り	無し
均質性		やや悪い	良い	悪い
一軸圧縮強度［MPa］		1.7	5.6	2.0

(c) 機械的強度

表 4-19 に示した配合と固化処理条件において、条件 2（加熱開始直後は温度を少し高くし、水分の蒸発抑制のための蓋をして作製したもの）が、ジオポリマー固化体の均質性や強度（5.6Mpa）が最も良いものであった。この結果より、混和水がない水和水からの水分だけであり、少ない水分量では蒸発を制御することが必要であることが分かる。

(d) ガス発生量低減化のための改良のポイント

乾式ジオポリマーの基本配合にある炭酸ナトリウムは模擬廃棄物として扱われているため、本来必要のない成分である。しかしながら予備試験において炭酸ナトリウムを除いた配合で混錬試験をしたところ、固化体に著しい材料分離が生じることが判明した。そのため、炭酸ナトリウムも必要な成分として扱う。

乾式ジオポリマーの改良のポイントとして、上記のように配合に自由度があまりないため、乾燥処理により固化体の含水率をどこまで低減できるかということになる。また、吸湿する可能性も確認する必要がある。

これらの改良のポイントを踏まえた試験計画を以下に示す。

1. 吸湿性の確認
   打設後に吸湿が終わる時間を把握する。
2. 乾燥条件の検討
   吸湿後に乾燥させる方法を抽出する。

②　放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良

乾式ジオポリマーについても、表 4-17 に示す目標値に対して、固化処理技術改良のための物性データを取得した。

(a)　ジオポリマーの乾燥と水分量測定

乾式ジオポリマーは、湿式ジオポリマーと同様、容積 1.5 L のモルタルミキサー（図 4-39）で混錬した。混錬後加熱前の乾式ジオポリマーの外観を図 4-45 に示す。また、混錬配合と試薬の詳細を表 4-20 に示す。

図 4-45　混錬後加熱前の乾式ジオポリマー

表 4-20　試薬詳細と配合

試薬	メタケイ酸ナトリウム $Na_2SiO_3 \cdot 9H_2O$	アルミナ Al_2O_3	炭酸ナトリウム Na_2CO_3
配合量	37%	13%	50%
試薬詳細	和光純薬製 試薬特級	和光純薬製 試薬特級	SAJ 社製 試薬特級

混錬した試験体は、直径 50 mm、高さ 100 mm の円柱供試体に打設した。乾式ジオポリマーは、加熱することでメタケイ酸ナトリウムから脱離した水がアルカリ性となり、アルミナ中のアルミニウムの反応を促進し、固化すると考えられる。

上記供試体は、図 4-46 に示す条件で加熱養生した。使用した乾燥機の外観を図 4-47 に示す。

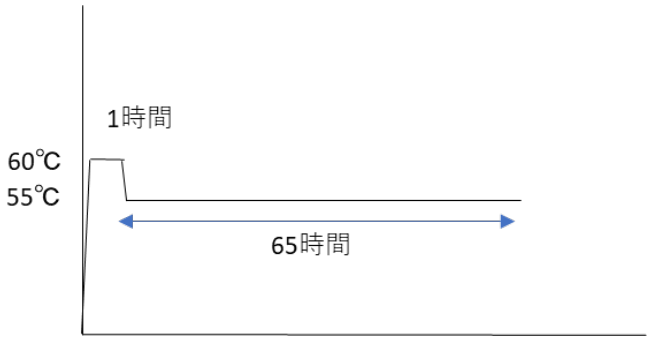


図 4-46　乾式ジオポリマーの養生条件

図 4-47　使用した乾燥機

乾燥中、すべてのサンプルにおいて、プラスチック製の円柱供試体の下部が破損し、内容物が漏れ出ていた（図 4-48)。取り出した固化体の様子を図 4-49 に示す。乾式ジオポリマーは漏洩のため、2 割程度体積が減少していた（表 4-21)。

湿式ジオポリマーは固化の際に膨張が発生するため、実機使用の際にはこの膨張が悪影響を及ぼさないか、検証が必要と考えられる。

図 4-48　膨張による容器破損と漏れ

（乾式ジオポリマーは漏洩のため 2 割程度体積が減少している）

図 4-49　取り出した固化体の様子

表 4-21　乾式ジオポリマー乾燥時の体積減少

試験体 No.	体積減少率［体積%］
1	14.1
2	17.6
3	15.4

図 4-50 に乾式ジオポリマーの水分値推移を示す。28 日時点においても、吸湿により水分値が上昇を続けている。今後、この吸湿がいつ終わるのかといった点を明らかにする必要がある。

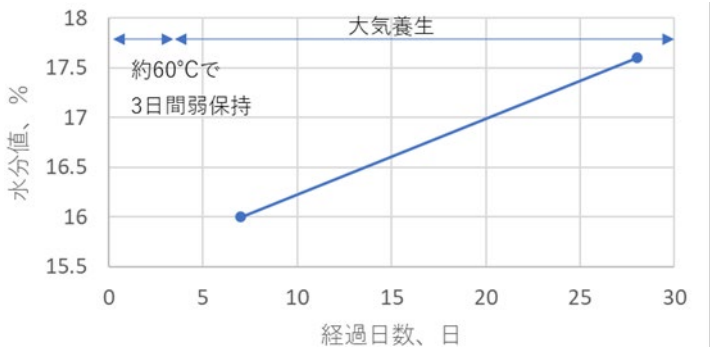


図 4-50　乾式ジオポリマーの水分値推移

(b)　流動性の測定

乾式ジオポリマーについては、混錬後打設までの数時間は粉状であった。このため、湿式ジオポリマーのような JIS 規定の流動性評価試験は実施していないが、流動性という点だけでいえば、少なくとも数時間は施工性に問題がないといえる。

(c)　一軸圧縮強度の評価

JISA1108:2018 に準拠して、乾式ジオポリマーの一軸圧縮強度を測定した。測定結果を図 4-51 に示す。当初設定した目標は 1.47 MPa 以上（埋設、セメント固化体）であり、強度はこれを満足している。

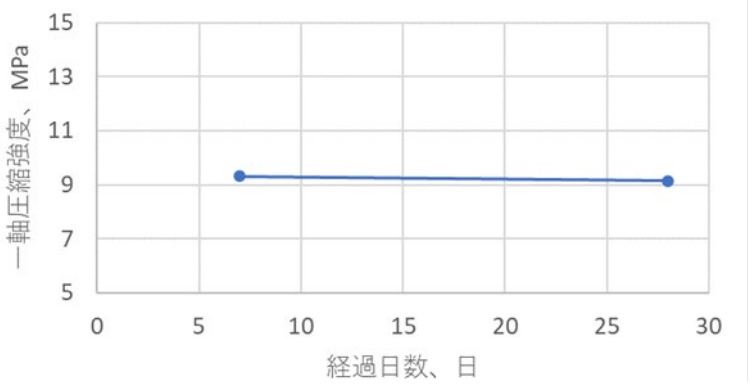


図 4-51　乾式ジオポリマーの一軸圧縮強度測定結果

(2) セメント固化

1) 高強度高緻密コンクリート

高強度高緻密コンクリートは、超高強度繊維補強コンクリートの設計・施工指針（案）（土木学会, 2004）で規定される標準配合粉体と、専用の高性能減水剤、練混ぜ水で構成される。標準配合粉体は、セメントを基材としてシリカフューム等の複数の粉粒体と骨材で構成される無機系複合材であり、これらの材料を予め混合した製品（プレミックス品）として流通している。

一般のコンクリートに比べ水結合材比を限界近くまで低くして、水和反応に寄与しない自由水を削減できることから、代替固化処理の固型化材料としてだけでなく、後充填方式によるパッケージ内充填材の候補材料として検討を進める。

(a) 配合例

高強度高緻密コンクリートの配合例を図 4-52 に示す（酒本, 2022）。コンクリートの強度や物質移行特性と密接に関係する水セメント比は 18～24%の範囲で、シリカフュームも含めた水結合材比とすると 12～20%となり、水和反応に寄与する粉体の量に対する水量が非常に少ない。水結合材比を水和反応の限界付近まで低くしていることで、空隙を極限まで抑えた最密充填により組織は高緻密となり、超高強度を実現している。

図 4-52 高強度高緻密コンクリートの配合例（酒本, 2022）

単位量（kg/m³）					
水	標準配合粉体				高性能減水剤
	セメント	シリカフューム	中間粒子	骨材	
180	744～1014	158～496	225～541	631～947	24

(b) 流動性・充填性

前述の配合例で示した通り、粉体の量に対する水量が非常に少ないが、高性能減水剤が添加されるため、高い流動性が得られる。JIS R 5201 に準拠したモルタルフロー試験では、200～300mm の高い流動性を示し、自己充填性を有するため締固めが不要である。このため、薄い部材や複雑な形状の部材への打設が可能であり、廃棄体開発調査（原環センター，2005）において検討された C-14 長期閉じ込め用廃棄体容器では、60cm×60cm×60cm の小規模容器の製作を実施しており、狭隘部でも充填できることが確認されている。

(c) 硬化物性

高強度高緻密コンクリートの標準養生は、脱型時まで湿潤養生し脱型後に 90℃48 時間を保持する蒸気養生としている。しかし、廃棄体パッケージの製作工程で標準養生が適用できないケースも考えられることから、過去の検討では常温養生（20℃の湿潤養生）とした場合の物性値も取得されている。常温養生を施した場合の物理的特性として、養生期間 2 年までの強度試験結果の例（原環センター，2005）を表 4-22 に示す。なお、引張強度の値は、繊維補強材なしの結果である。

養生期間 2 年までの測定の結果、常温養生は養生期間 182 日で 188MPa となり、それ以降の強度発現は頭打ちとなる傾向を示した。また蒸気養生での各強度に対する常温養生条件下での各強度の比率は、圧縮強度が 0.9、曲げ強度が 0.8、引張強度が 0.6 程度であった。

表 4-22　強度試験結果の例（原環センター，2005）

	常温養生							蒸気養生
	4 日	7 日	28 日	91 日	182 日	1 年	2 年	
圧縮強度（MPa）	72	92	140	175	188	198	193	210
静弾性係数（×10⁴MPa）	4.18	4.34	5.21	5.49	5.57	5.60	5.55	5.30
曲げ強度（MPa）	—	19.4	26.8	27.8	28.9	30.8	30.1	40
引張強度（MPa）	—	6.26	6.94	7.04	7.19	—	7.10	12

(d)　自由水量

自由水量は、105℃で乾燥した際の試料の質量減少量を、乾燥前の試料量で除した比率として定義した。これに従い、高強度高緻密コンクリートについても普通ポルトランドセメント（以下 OPC）を使用したコンクリートと同様にφ5cm×h10cm のまま 105℃乾燥したところ、14 日経過後も質量変化率が一定とならなかった。そこで、試料形状が 2×2×3cm とφ5×h10cm の 2 水準、養生期間が 1 日、7 日、28 日と変えた高強度高緻密コンクリートの乾燥期間と質量変化率との関係を検討した。結果を図 4-53 に示す。

養生期間の違いでは、養生期間が長い試料ほど質量変化率は小さくなった。養生期間 1 日では質量変化率が大きいが、養生期間 7 日と養生期間 28 日ではその差異は小さかった。高強度高緻密コンクリートは極低水結合材比のため 7 日以降の水和反応は停滞していることが考えられる。また、質量変化率が一定となり恒量に達したとみなせたのは、養生期間 1 日及び 7 日のいずれも 2×2×3cm の試料のみであった。2×2×3cm でも養生期間 28 日では、乾燥期間 13 週でも恒量とならなかった。間隙径分布の結果からも分かるように、養生期間 28 日では、間隙が少ない極めて緻密なコンクリートであるため、水分の散逸も時間がかかったものと考えられる。

養生期間 1 日及び 7 日の 2×2×3cm の試料が最終的に到達した質量変化率（＝自由水量）は、4～5%程度であり、この値は OPC コンクリートと比較して大きな差異はなかった。セメント系材料の自由水量は、水素ガス発生量に大きく影響するため、自由水量を把握することは重要であり、評価方法についても検討すべき項目の一つである。

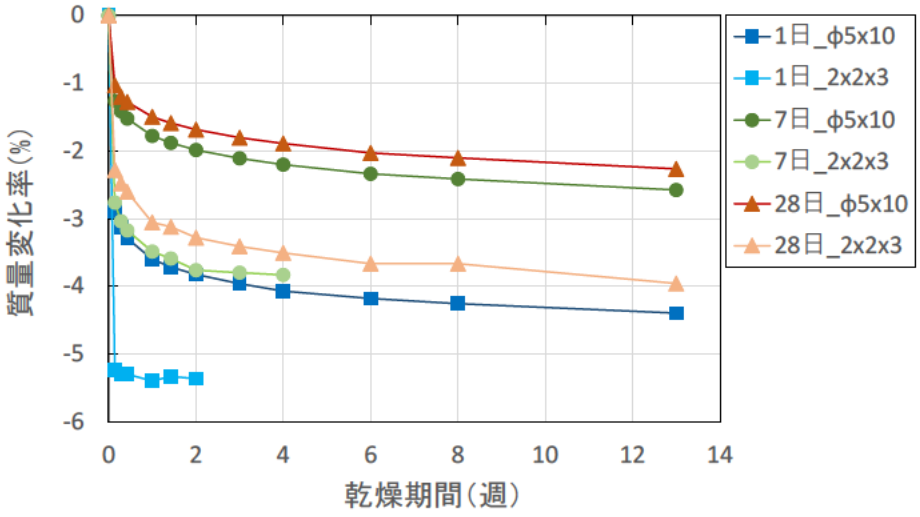


図 4-53　乾燥期間と高強度高緻密コンクリートの質量変化率の関係

(e)　自由水量と水素ガス発生量の関係

高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生量と自由水量の関係を検討した。高強度高緻密コンクリートの自由水量は、試料を粉末状にし、105℃での質量減少量を自由水量とした。表 4-23 に高強度高緻密コンクリートの試料条件（原環センター,2022）を示す。自由水量と水素ガス発生量の関係を OPC コンクリート、モルタル、ペーストのデータとともにプロットした図を図 4-54 に示す。

図 4-54 に示すように、高強度高緻密コンクリートからの自由水量と水素ガス発生量の関係は、OPC 系材料とは異なる関係にあった。OPC 系材料では自由水と水素ガス発生量との間に直線的な相関が認められ、明確に水素ガス発生量が自由水に依存していた。一方、高強度高緻密コンクリートでは、この直線関係から外れた位置にプロットされ、自由水量が同程度の OPC 系材料に対して水素ガス発生量は小さくなる結果となった。高強度高緻密コンクリートでは、自由水量が OPC コンクリートと同程度含有していても水素ガス発生量は少ないことが明らかとなった。

また、養生期間 2 日の高強度高緻密コンクリートは、養生期間 8 日の試料よりも水素ガス発生量が大きい結果となった。養生期間が短いため、自由水量が多く、緻密化していない試料では、ガス発生量が多くなっている。その他、蒸気養生した試料を粉砕した試料では、バルク試料でかなり少なかった水素ガス発生量が増加していた。高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生量と自由水量の関係、さらに形状の違いによる水素ガス発生量の違いなど、高強度高緻密コンクリートについてはデータを蓄積し、OPC コンクリートの違いも含め解明する必要がある。また、蒸気養生したケースでは 2 回測定を行ったが、バラツキが見られた。再現性など、高強度高緻密コンクリートを内部充填材に適用するためにはデータ蓄積が必要である。

表 4-23　高強度高緻密コンクリートの試料条件（原環センター,2022）

試料名		試料	試料条件
			養生・養生期間
高－バルク	高-2d	高強度高緻密コンクリート 繊維無し	封緘養生　養生期間 2 日で照射
	高-8d		封緘養生　養生期間 8 日で照射
	高-蒸気①		蒸気養生後、封緘養生
	高-蒸気②		上記に同じ
高-蒸気-粉			蒸気養生後、2-7mm に粉砕

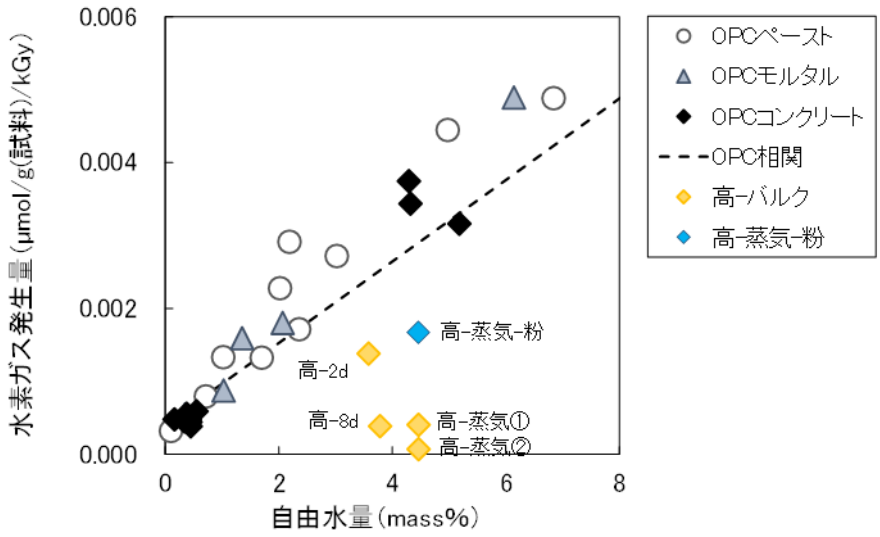


図 4-54　自由水量と水素ガス発生量の関係（原環センター,2022）

(f)　水密性（間隙率、細孔容積）

静水圧環境に浸漬した試料の質量変化率の経時変化（繊維補強材あり）を図 4-55 に示す。

常温養生の水密性について、拡散係数あるいは透水係数を直接的には得ていないが、1MPa および 10MPa の静水圧環境にφ5×2cm の試験片（試験片全面から浸透）を長期間浸漬し、水浸透挙動を評価した報告がある（渋谷, 2008）。評価の結果、浸漬開始から 24 ヶ月までは水の浸透を目視で確認することはできなかったが、10MPa の条件のみで 24 ヶ月目で 4～6mm の浸透が確認されたと報告されている。また、水浸透が目視観察で認められなかった間でも、試料の質量は増加し、僅かながら水が浸透している可能性があることを示している。

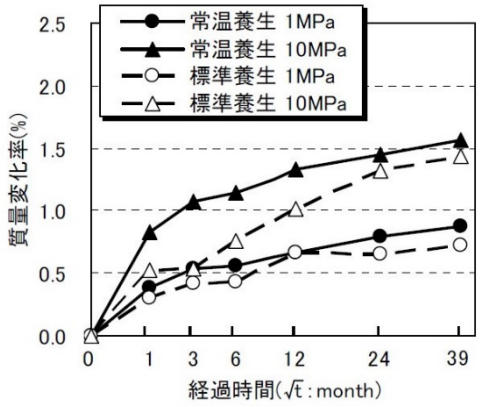


図 4-55　静水圧環境に浸漬した試料の質量変化率の経時変化（繊維補強材あり）（渋谷, 2008）

近年では、蒸気養生を施した高強度高緻密コンクリートについて、高精度なトランジェントパルス透水試験により透水係数を測定した事例があり（加藤, 2020）、封圧を 2～10MPa、間隙圧を 1MPa 一定として、温度を制御した環境で測定した結果、10^{-13}～10^{-12}m/s のオーダーのインタクトな花崗岩の透水係数と同等かそれよりも低い値を示したと報告されている。

これらの報告より、高強度高緻密コンクリートは水密性に優れることが示されているが、この特性は、最密充填となる配合設計により、緻密な細孔構造になっていることに拠る。

高強度高緻密コンクリートと JIS モルタルの間隙径分布を図 4-56 に、縦軸を微分細孔経容積にした間隙径分布を図 4-57 にそれぞれ示す。

JIS モルタルの間隙率は、1 日で 19%、養生期間の経過に伴い減少しているが、28d でも 16%程度であるのに対し、高強度高緻密コンクリートは間隙率が養生期間 1 日でも 15%程度と小さく、3 日及び 7 日で 10%、28 日で 5%と水和が進むにつれて間隙率がより小さくなっていた。また、蒸気養生を行った場合は、間隙率 3%とさらに小さい値であった。

図 4-57 より、JIS モルタルの場合、1 日で細孔径 0.1～1.0μm に幅広く細孔が存在し、養生期間が長くなるにつれ微分細孔容積のピーク位置が小径側にシフトしていた。細孔構造としては 0.003～10μm 付近までの分布幅があり、様々な径の細孔がある構造となっている。一方、高強度高緻密コンクリートでは養生期間 1 日では 0.04μm 付近、養生期間 3 日と 7 日ではより小径側にシフトした 0.015μm 付近にシャープなピークが存在した。高強度高緻密コンクリートは、同じ程度の孔径の細孔が分布している構造であることがわかる。養生期間の経過とともに小径側にシフトし、養生期間 28 日では細孔量が減少している。蒸気養生試料は、水銀圧入式ポロシメータで測定可能な細孔がほとんど検出されない結果であった。最密充填となる配合設計であるため、水和初期には単一径の細孔が多く存在し、この径の孔が水和の進行に伴い小さくなり、やがて細孔が

ほとんど存在しない構造になって緻密化していることが確認された。

以上、高強度高緻密コンクリートは、孔径数 μm 以上の細孔をほとんど有していないことから、水密性に優れた材料であることが確認された。

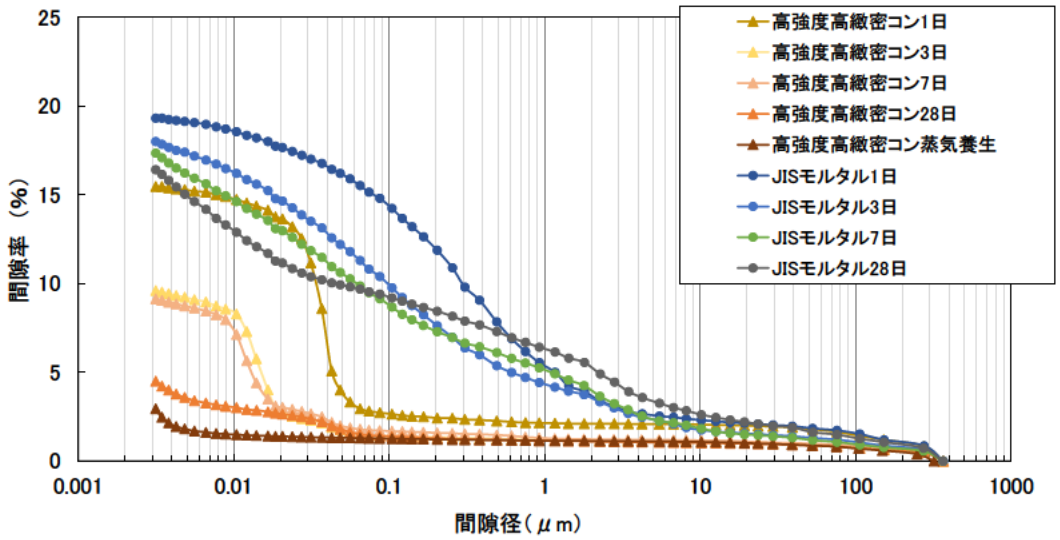


図 4-56　高強度高緻密コンクリート及び JIS モルタルの間隙径分布

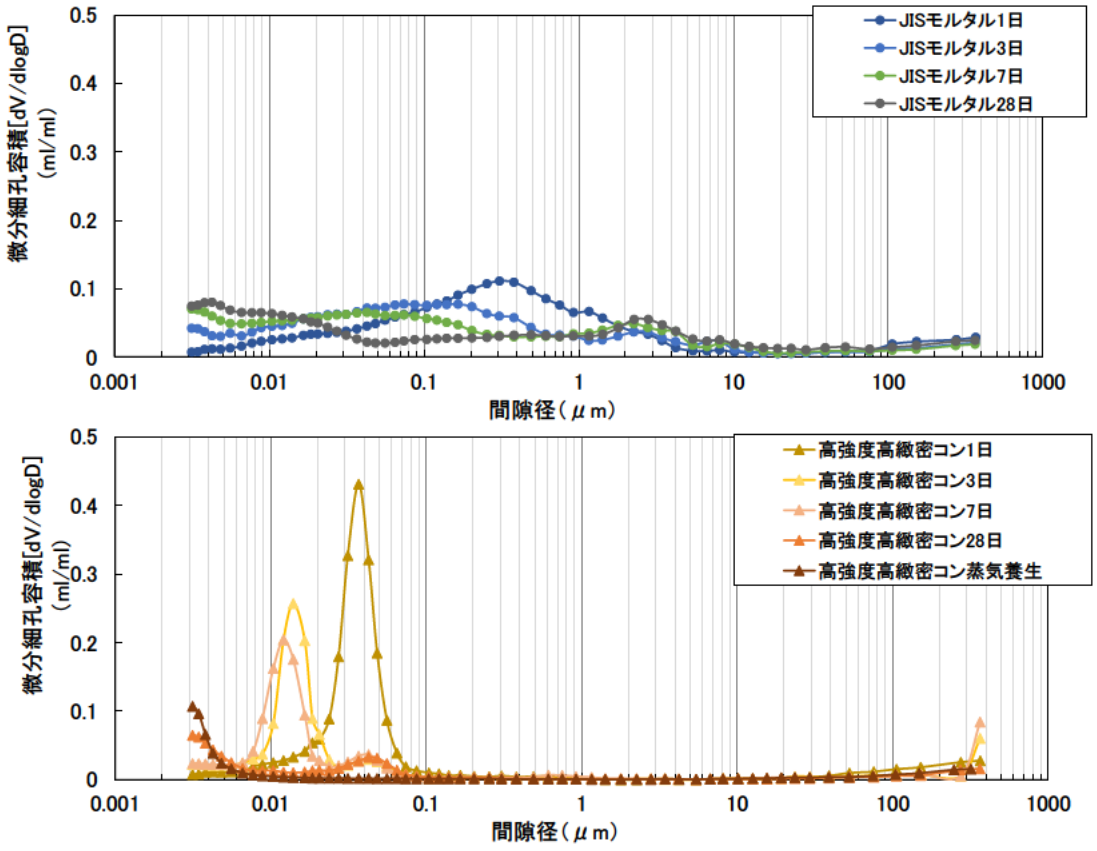


図 4-57　高強度高緻密コンクリート及び JIS モルタルの微分細孔経容積

（上図：JIS モルタル，下図：高強度高緻密コンクリート）

(g)　ガス発生量低減化のための改良ポイント

高強度高緻密コンクリートについては現状でガス発生量が少ないデータが得られているとともに、配合の自由度がないため、現状の配合の変更は考えていない。また、緻密な構造のため乾燥による自由水量の低減も現実的に難しいため、乾燥工程についても加えることは検討しない。したがって、放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良のための試験は予定していない。

一方、水和挙動や細孔構造の違いがガス発生量に影響している可能性が考えられるが、そのメカニズムが現状では十分解明できていないという課題がある。そのようなガス発生量が少ない要因を明らかにするために、ガス発生挙動に係る物性データの取得を今後進める。

②　ガス発生挙動に係わる物性データの取得

高強度高緻密コンクリートのガス発生挙動に係る特性として、水和挙動、水素ガス発生挙動、細孔構造を把握するための試験を実施する。

(a)　高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討

高強度高緻密コンクリートにおける水の存在形態を検討するためには、高強度高緻密コンクリートの水和挙動について評価する必要がある。高強度高緻密コンクリートは通常のコンクリートと比較して水分含有量が少ないため、通常のコンクリートと同様に水和が進行するか明確になっていない。そこで、セメントの水和の進行程度として、結合水量や自由水の水分量の時間変化について、細孔径分布の時間変化等の水和挙動に関するデータから検討した。

硬化した高強度高緻密コンクリートを粉砕して全量を 1.18mm 以下としたのちに、850μm のふるい上に残る 850μm～1.18mm に調製した試料と、ふるいを通過した 850μm 以下の試料に分級した。850μm～1.18mm に調製した試料は、後述 4.3 項において水素ガス発生試験に供する試料の粒径と同様である。試験水準と分析項目を表 4-24 に示す。

自由水量及び結合水量については、乾燥処理は行わずに、すぐに測定を実施した。その他の分析についてはアセトンに浸漬して間隙水を溶媒で置換し、その後重量変化が認められなくなるまで真空乾燥して試料を分析に供した。

細孔径分布の測定以外は、850μm 以下に粉砕した表 4-24 に示す材齢の試料を分析に供した。細孔径分布の測定は 5mm 角程度のブロック状試料を通常用いるが、本試験では後述の照射試験に用いる試料と同様な形状である 850μm～1.18mm の小粒径試料を用いた。

表 4-24　高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討の試験水準と試験項目

試料名	粒径	養生期間	自由水	結合水	鉱物相	XRF	TG-DTA	細孔径分布
高-1d	850μm以下	1 日	○	○	○	—	○	—
高-3d		3 日	○	○	○	○	○	—
高-7d		7 日	○	○	○	○	○	—
高-28d		28 日	○	○	○	—	○	—
高-小粒径-1d	850μm～1.18mm	1 日	—	—	—	—	—	○
高-小粒径-3d		3 日	—	—	—	○	○	○
高-小粒径-7d		7 日	—	—	—	○	○	○
高-小粒径-28d		28 日	—	—	—	—	—	○

a. 使用材料

高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討の試験の作製に用いた使用材料を表 4-25 に示す。

表 4-25　使用材料

材　料	仕　様
高強度高緻密コンクリート	太平洋セメント(株)社製プレミックス品
練混ぜ水	上水道水

b. 試料調整

高強度高緻密コンクリートについては、専用減水剤を結合材に対して 1.5mass%添加した配合（以下、基本配合）で練混ぜを行った。練混ぜは、ホバートミキサーを使用し、1 バッチの練混ぜ量は 3L とした。練混ぜた試料は、タッパーに打設し、材齢が 1 日の試料を除き練混ぜの翌日に乾燥防止のため試料の上部に水を張った。材齢が 1 日の試料は当日、3 日は材齢 2 日前、それ以外の試料は材齢の 1 週間程度前から 1.18mm 以下に粉砕した後 850μm 以下の粒子をふるい分けたのち所定材齢まで口を輪ゴムで縛って密封したポリエチレン袋内で封緘養生した。細孔径分布の測定については、850μm のふるい上の 850μm～1.18mm の粒子を、口を輪ゴムで縛って密封したポリエチレン袋内で所定材齢まで封緘養生した。養生期間 28 日の高強度高緻密コンクリートの小粒径試料を図 4-58 に示す。

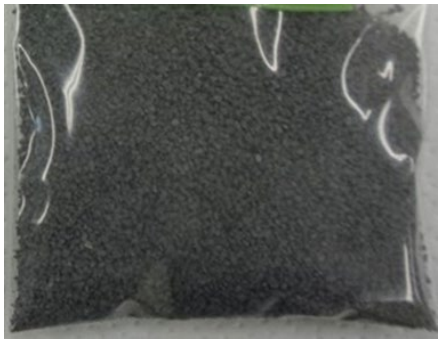


図 4-58　高強度高緻密コンクリートの小粒径試料（養生期間 28 日）

c. 自由水量及び結合水量の測定

○ 試験方法

水和したセメント材料を 105℃及び 600℃で乾燥しその質量減少量を測定した。105℃までの質量減少量を自由水として定義し、105 から 600℃までの質量減少量を結合水量として定義した。105℃の乾燥では、空隙水及び毛細管水に加えゲル水も蒸発し、自由水としてカウントされる。また、エトリンガイトやモノサルフェートなどのカルシウムアルミネート水和物は、結晶水の一部が脱水する（Scrivener et al., 2016）ことが知られている。105℃乾燥条件で測定した自由水には水和物の結晶水や C-S-H のゲル水に相当するものが含まれるが、本検討では以下のように自由水量、結合水量及び全水分量を定義した。

自由水量(mass%) = 105℃での質量減少量(g)／試料質量(g)×100　（式 4-1）

結合水量(mass%) = 105℃～600℃での質量減少量／試料質量(g)×100　（式 4-2）

全水分量(mass%) = 自由水量＋結合水量　（式 4-3）

○　試験結果と考察

高強度高緻密コンクリートの自由水量と結合水量の測定結果を表 4-26 に、養生期間と結合水量の関係を図 4-59 に示す。

自由水量については養生期間の増加とともに減少する傾向にあるが、7 日から 28 日の期間でやや増加していた。表面付着水も自由水として測定されるため、試料間の表面付着水の量の差異が影響した可能性も考えられる。

結合水量については、養生期間 7 日まで増加し、それ以降はほぼ同様の値となったことから、養生期間 7 日程度までは水和反応が比較的速い速度で進行し、その後の水和反応はゆっくりと進行しているものと考えられる。

表 4-26　高強度高緻密コンクリートの自由水量と結合水量の測定結果

試料名	養生期間	自由水量 mass%	結合水量 mass%
高強度高緻密コンクリート	1 日	5.48	1.71
	3 日	4.36	2.26
	7 日	4.34	3.13
	28 日	4.75	3.23

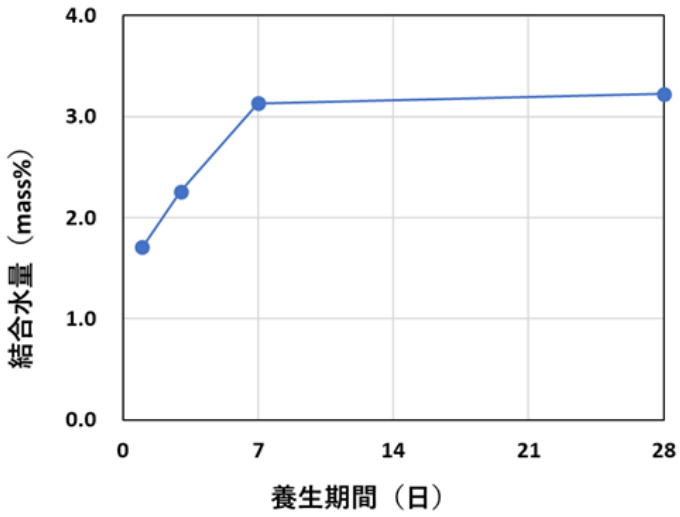


図 4-59　養生期間と結合水量の関係

d.　粉末 X 線回折（XRD）による鉱物の同定結果：

○　試験方法

高強度高緻密コンクリートにおける水和の進行度及び生成した水和物を確認するため XRD による鉱物同定を行った。試料をメノウ乳鉢で微粉砕したものを測定に供した。XRD の測定条件を以下に示す。

・装置：粉末 X 線回折装置　Empyrean (PANalytical 社製)
・条件：[ターゲット] Cu，[電流－電圧] 45kV-40 mA，[測定範囲] 2 θ =5～65°
　　[ステップ幅] 0.03 °/step

○　試験結果と考察

XRD による鉱物同定結果を表 4-27 に、XRD 測定結果を図 4-60 に示す。

いずれの試料も同定された鉱物は同じであった。石英、長石、カリ長石、雲母、緑泥石、角閃石は骨材由来の鉱物である。セメント由来の鉱物として、未水和セメント鉱物である C_3S、C_2S および C_4AF が同定され、水和物由来の鉱物としてポルトランダイトとエトリンガイトが同定された。なお、（養生期間 7 日）高-7d の試料では、エトリンガイトが検出されなかったが、（養生期間 28 日）高-28d の試料で検出されていることから、試料の乾燥が進んでいたことにより、エトリンガイトのピークが確認されなかったものと考えられ、試料中には含有していると推測される。ポルトランダイトのピークは、材齢の経過に従い、大きくなっており、水和が進んでいるものと考えられるが、養生期間 28 日においても C_3S、C_2S のピークが大きく確認され、未水和のセメントがかなり残存している状況であることが確認された。

表 4-27　XRD による鉱物同定結果

試料	C_3S	C_2S	C_4AF	ﾎﾟﾙﾄﾗﾝﾀﾞｲﾄ	ｴﾄﾘﾝｶﾞｲﾄ	石英	長石	カリ長石	雲母	緑泥石	角閃石
高-1d	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
高-3d	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
高-7d	○	○	○	○	－	○	○	○	○	○	○
高-28d	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

○：検出された鉱物，－：検出されず

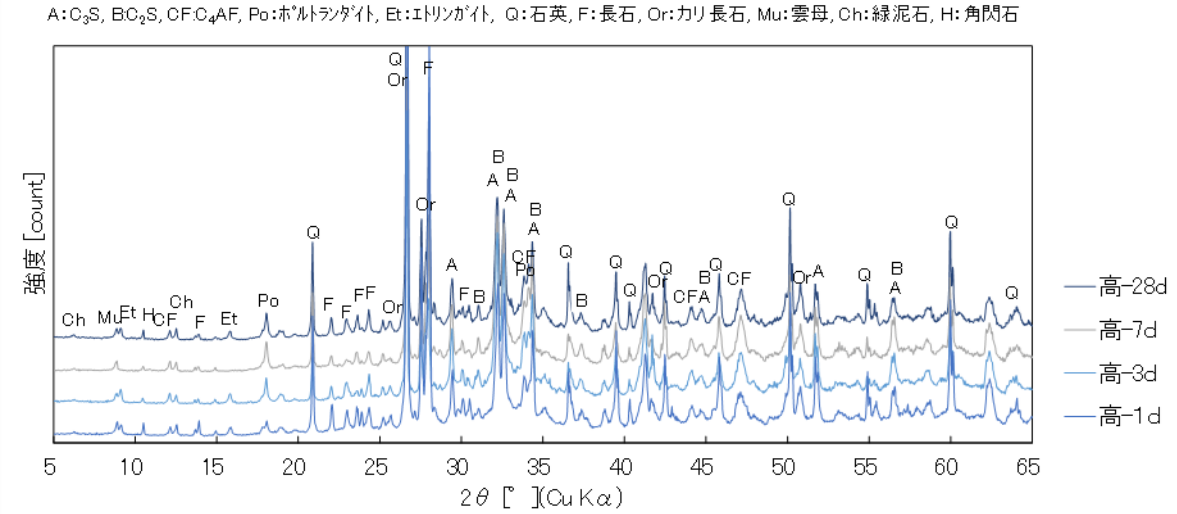


図 4-60　XRD 測定結果

e.　蛍光 X 線による化学組成分析

○　試験方法

試料の分級の影響による試料の均一性を確認するため、蛍光 X 線分析（XRF）による試料の化学組成分析を実施した。試料はディスク型ミルで微粉砕後、測定に供した。測定装置及び測定条件を以下に示す。

・装置：蛍光X線分析装置 ZSX PrimusⅣ（㈱リガク社製）
・測定：検量線法による

・強熱減量：950℃1 時間強熱による減量値

○ 試験結果と考察

養生期間 3 日及び養生期間 28 日の試料を、850μm～1.18mm 及び 850μm 以下に調製した試料の化学組成分析結果を表 4-28 に示す。

粒径が異なる試料は、各材齢でほぼ同一の化学組成であった。高強度高緻密コンクリートは、強度が強く、砂とセメントペーストとの付着強度も通常のコンクリートよりも高いことが想定される。本結果においても、セメントペーストのみが 850μm 以下に偏ることはなく、分級による影響は見られなかった。850μm ふるい上（850μm～1.18mm）とふるい下（850μm 以下）は、同一の試料と判断された。また、材齢が異なる試料でもほぼ同一の結果となっており、材齢ごとの試料間のバラツキもの少ないものと考えられる。

表 4-28　粒径の異なる試料の化学組成

試料名		化学組成 （%）											
試料	粒径	ig.loss	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	MgO	SO_3	Na_2O	K_2O	TiO_2	P_2O_5	MnO
高-3d	850μm～1.18mm	7.15	47.03	6.53	3.01	31.25	0.88	1.09	1.27	1.13	0.21	0.19	0.09
	850μm 以下	7.18	47.29	6.39	3.00	31.28	0.87	1.08	1.24	1.12	0.21	0.19	0.09
高-28d	850μm～1.18mm	7.86	46.64	6.43	2.99	31.17	0.89	1.09	1.25	1.10	0.22	0.19	0.09
	850μm 以下	7.97	46.60	6.32	3.00	31.34	0.87	1.09	1.22	1.10	0.21	0.19	0.09

f.　熱重量－示差熱分析（TG-DTA）による水酸化カルシウムの定量結果

○ 試験方法

高強度高緻密コンクリートにおけるセメントの水和の進行程度及び水分量の測定のため TG-DTA による測定を行った。試料は、メノウ乳鉢で微粉砕したものを測定に供した。装置および測定条件を以下に示す。

なお、400℃付近に吸熱反応を伴う重量減少が見られた場合には、$Ca(OH)_2$ の脱水反応によるものと判断し、その減量値より、式(1)から $Ca(OH)_2$ 量を算出した。また、600~800℃付近に重量減少が見られた場合には、$CaCO_3$ からの脱炭酸による減量と判断し、減量値より、式(4-4)を用いて $CaCO_3$ 量を算出した。また、参考として、TG 曲線より、30～105℃までの重量減少および 105～600℃までで重量減少を求めた。それぞれ、自由水量と結合水量に相当する重量減少であるが、測定試料の乾燥条件が異なるため、「c.自由水量及び結合水量の測定」で求める値とは一致する値ではないが、結合水量については、相対的な評価はできるものと考えられる。

装置：Thermo plus EVO2 (リガク社製)

条件：[試料量] 約 20mg, [温度範囲] 室温～1000℃, [昇温速度] 10℃/min,
[雰囲気ガス] 窒素 300ml/min, [基準物質] α-Al_2O_3

$$\text{水酸化カルシウム量}(\%) = \text{脱水による減量}(\%) \times \frac{74.10}{18.02} \qquad \text{（式 4-4）}$$

74.10：水酸化カルシウムの分子量、18.02：水の分子量

$$炭酸カルシウム量(\%) = 脱炭酸による減量(\%) \times \frac{100.09}{44.01} \qquad (式\ 4\text{-}5)$$

100.09：炭酸カルシウムの式量、44.01：二酸化炭素の分子量

○ 試験結果と考察

TG-DTA の測定結果を表 4-29 に、各試料の TG-DTA 曲線を図 4-62～図 4-67 に示す。

いずれの試料も炭酸カルシウムの脱炭酸による重量減少は確認されなかった。粒径の違いによる測定結果においは、（養生期間 3 日）高-3d および（養生期間 7 日）高-7d ともに TG-DTA の測定結果に大きな差異は認められないことから、今回、850μm でふるい分けを実施しているが、試料の均一性は保たれているものと考えられる。

結合水量および $Ca(OH)_2$ 量の養生期間ごとの比較を図 4-61 に示す。養生期間 1 日（高-1d）から養生期間 7 日（高-7d）までは、結合水量および $Ca(OH)_2$ 量ともに増加が見られた。養生期間 7 日（高-7d）と養生期間 28 日（高-28d）では、結合水量および $Ca(OH)_2$ 量ともに同程度であり、水和が大きく進んでいる状態ではないことが確認された。前項の XRD の結果より、高-28d の試料においても C_3S が残存しており、水が十分に供給されれば、活発に水和反応が促進される状態である。緻密であることおよびセメントの割合に対する水量が少ないことから養生期間 7 日以降の水和はあまり促進されていないことが考えられる。

表 4-29　TG-DTA の測定結果

試料名		自由水(%)	結合水(%)	$Ca(OH)_2$（%）	
試料	粒径	30-105℃	105-600℃	H_2O 減量	$Ca(OH)_2$ 量
高-1d	850μm 以下	0.41	1.79	0.19	0.78
高-3d	850μm 以下	1.13	3.60	0.66	2.71
高-3d(小粒径)	850μm～1.18mm	1.13	3.63	0.67	2.76
高-7d	850μm 以下	1.30	4.19	0.76	3.13
高-28d	850μm 以下	1.26	4.40	0.80	3.29
高-28d(小粒径)	850μm～1.18mm	1.71	4.28	0.73	3.00

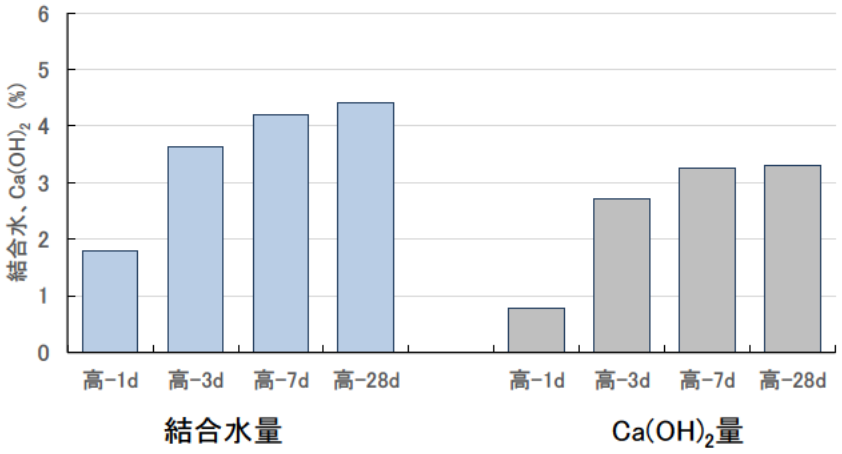


図 4-61　結合水量及び $Ca(OH)_2$ 量の材齢ごとの比較

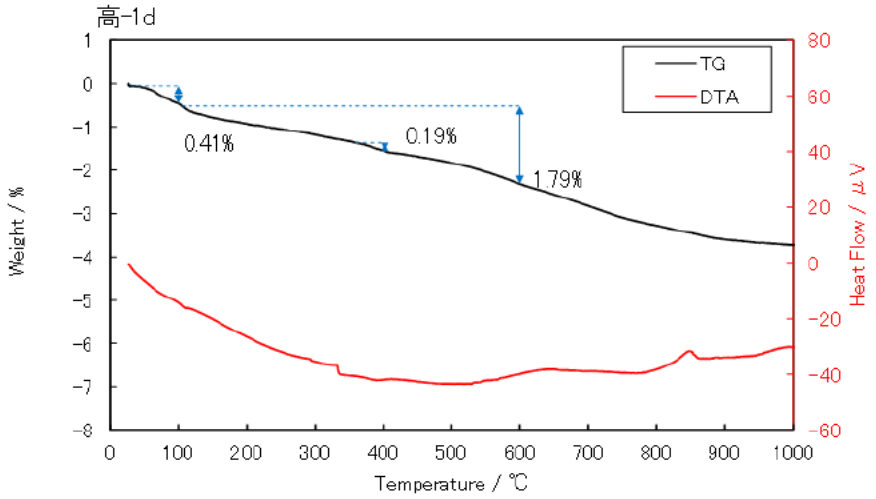


図 4-62　（養生期間 1 日）高-1d の TG-DTA 曲線

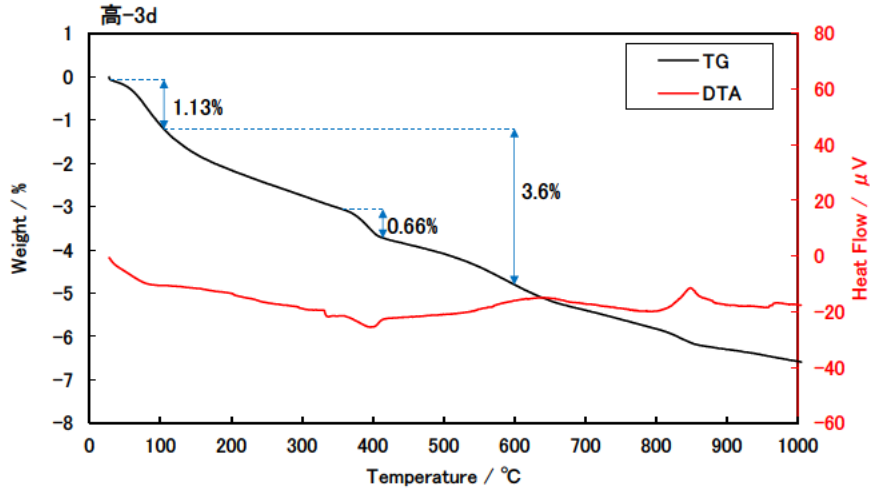


図 4-63　（養生期間 3 日）高-3d の TG-DTA 曲線

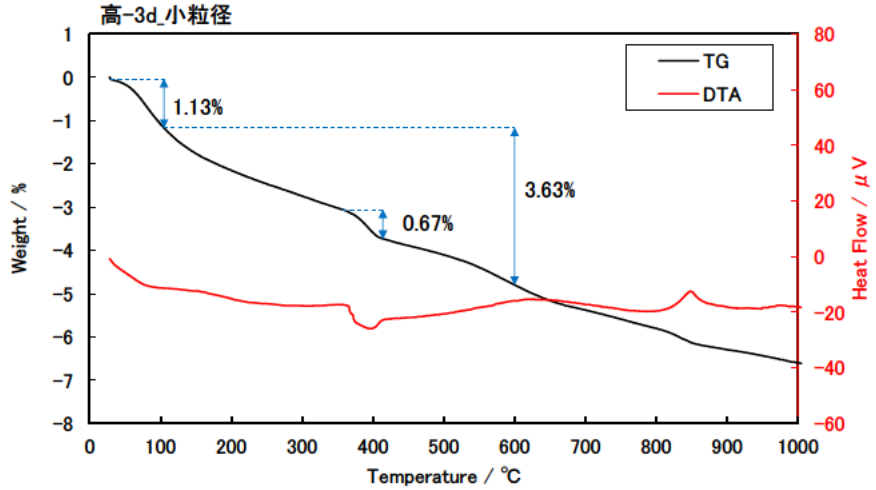


図 4-64　（養生期間 3 日）高-3d 小粒径の TG-DTA 曲線

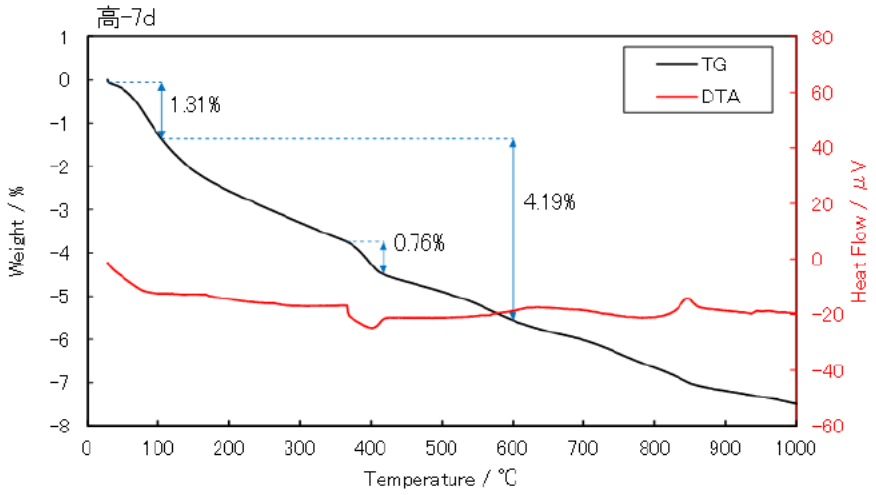


図 4-65　（養生期間 7 日）高-7d の TG-DTA 曲線

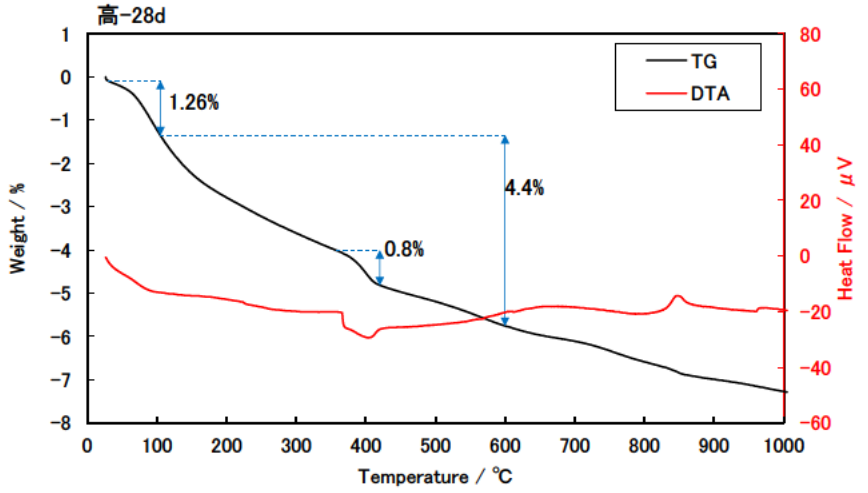


図 4-66　（養生期間 28 日）高-28d の TG-DTA 曲線

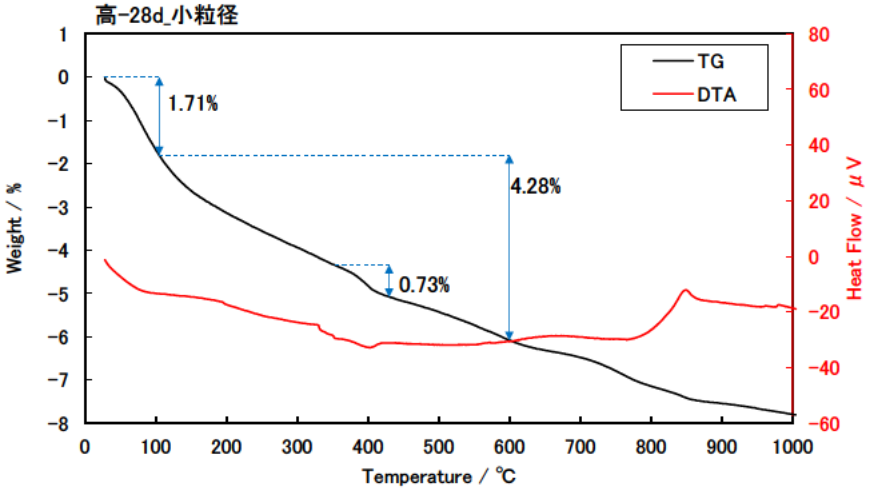


図 4-67　（養生期間 28 日）高-28d 小粒径の TG-DTA 曲線

g. 細孔径分布の測定

○ 試験方法

水和の進行程度に伴い変化する細孔径分布を確認するために、水銀圧入法により細孔径分布を測定した。なお、測定試料は、小粒径試料（850μm～1.18mm）とした。試料を真空乾燥機で 1 週間乾燥させたものを試験に供した。以下に測定装置をおよび条件を示す。

・装置：micromeritics 社製水銀圧入式ポロシメーターAutoPoreⅤ 9620
・条件：[ガラス製試料容器] 試料室容積 5 ml，[キャピラリ容積] 0.392 ml

加える圧力と水銀が圧入される細孔の大きさには下式の関係があるので、これにより各圧力に相当する細孔径を算出した。

【圧入圧力と細孔径の関係式】

$d = -4\gamma \cos\theta / P$

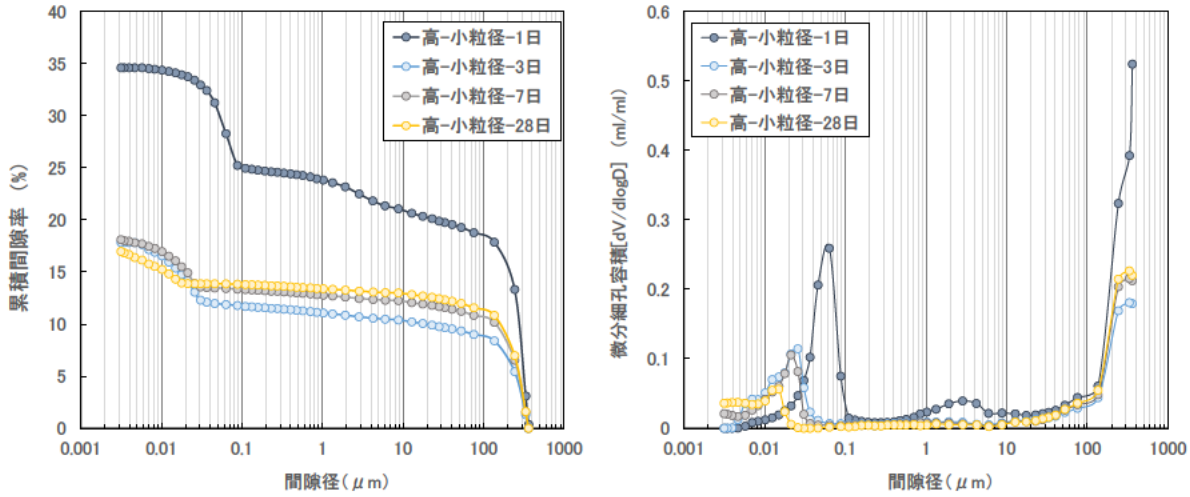
d：細孔径（直径）
γ：水銀の表面張力 0.484 N / m
θ：水銀と試料との接触角 130 °（$\cos\theta = -0.643$）
P：圧入圧力 MPa

○ 試験結果と考察

高強度高緻密コンクリートの細孔径分布の測定では、測定対象の水和停止と間隙水の除去を目的としてアセトンによる自由水の置換を実施した。測定対象の粒子が大きい場合アセトンによる試料内部の自由水が完全に置換されず、試料内部に自由水が残る可能性があるため小粒径試料を分析に供した。水銀圧入法による細孔径分布の測定結果を図 4-68 に示す。

図 4-68 (b)の微分細孔容積のデータより、養生期間 1 日では、1μm～10μm の間隙径の細孔が存在するが、材齢 3 日になると、この範囲の大きさの細孔は見られなくなった。また、0.1μm 以下の細孔は、材齢の経過とともに大きな径の細孔は減少した。さらに 0.01μm より小さい径の細孔は、養生期間 28 日で、若干増加する傾向が見られた。数 nm の細孔径は、C-S-H 水和物の微細な間隙に相当するため、水和が進み C-S-H が増加することにより増加する傾向が見られる。本試料においても養生期間 28 日で数 nm の細孔径の増加が見られていることから、7 日から 28 日にかけて水和が進行していたことが確認された。

ここで、図 4-68 (a)の累積間隙率のデータより、いずれの試料も 100μm 以上の大きな径がかなり割合を占めている結果となった。試料に大きな空隙が多く存在することも考えられるものの、本測定に用いた試料は、850μm～1.18mm と小さな粒状の試料であるため、試料の粒子同士が重なりあってできた間隙を測定している可能性が高い。そこで、間隙径 100μm 以上の間隙については、粒子同士の重なりの間隙に相当すると仮定し、100μm 以上の間隙容積を除き、間隙径 100μm 以下の累積間隙容積を図 4-69 に示す。なお、100μm 以上の間隙容積を除外した場合、試料のかさ密度が異なってくるため、図の縦軸は、間隙率ではなく、単位試料重量当たりの累積間隙容積として示す。養生期間 1 日から養生期間 3 日にかけて、細孔容積量が大きく減少し、養生期間 3 日で緻密な硬化体を形成していると考えられる。その後も徐々に水和の進行とともに 0.05μm 以下の間隙が減少し、間隙の少ない緻密な硬化体と変化していることが確認された。



(a)累積間隙率　　(b) 微分細孔容積

図 4-68　小粒径試料における間隙径と微分細孔容積の関係

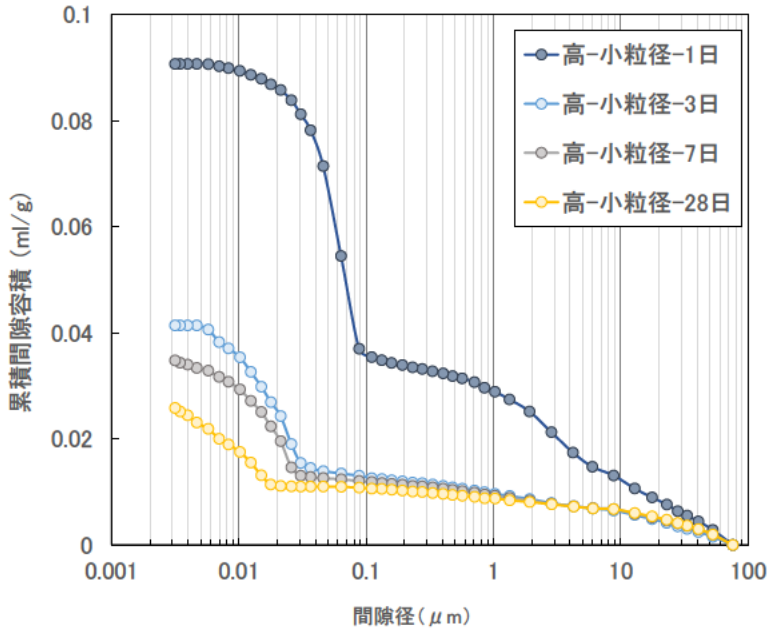


図 4-69　100μm 以下の累積間隙容積

次に、本年度の細孔径分布の結果を、令和 3 年度に実施した蒸気養生試料の高強度高緻密コンクリートの細孔径分布の結果と比較した。蒸気養生後の試料の微分細孔容積との比較を図 4-70 に示す。

蒸気養生後の試料は、高-28d 試料よりもさらに緻密であり、0.01μm 以上の間隙はほとんど見られないコンクリートであることがわかった。

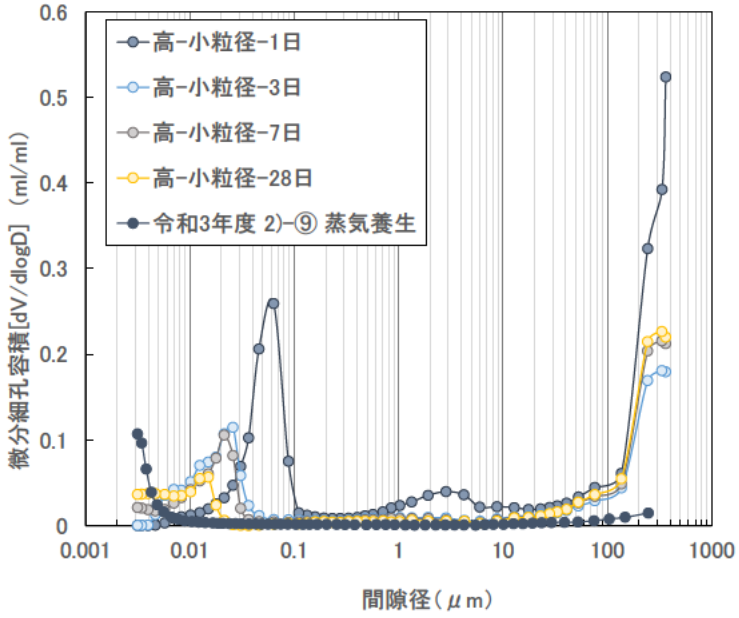


図 4-70　蒸気養生後の試料の微分細孔容積との比較

(b)　高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価

照射施設や水素ガスの採取方法及び水素ガス濃度の測定方法の違いによる影響を確認するため、高強度高緻密コンクリートに加え、OPC モルタル及び OPC ペーストについて測定を実施した。高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価の試験水準と分析項目を表 4-30 に示す。なお、本試験においては、水素ガス発生量の評価で照射した試料の自由水の測定も実施した。

- 試料：高強度高緻密コンクリート、OPC モルタル、OPC ペースト
- 試験項目：自由水量、γ線照射後の水素ガス発生量
- 照射施設：名古屋大学コバルト 60γ線照射室

令和 5 年度は、名古屋大学コバルト 60γ線照射室において照射試験を実施し、照射試験容器、発生したガスの回収方法が過年度と異なることから、照射施設や水素ガスの回収、測定方法の違いによる水素ガス発生試験への影響を確認するため、高強度高緻密コンクリートに加え、OPC モルタル及び OPC ペーストについてγ線の吸収エネルギーと水素ガス発生の関係について検討を実施した。

表 4-30　高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価の試験水準と分析項目

材料	試料名	自由水	水素発生量
高強度高緻密コンクリート	高-ペレット-28d	○	○
OPC ペースト	OP-小粒径-0.45	○	○
	OP-ペレット-0.45	○	○
OPC モルタル	OM-ペレット-0.45	○	○

a.　使用材料

本試験試料の作製に用いた使用材料を表 4-31 に示す。

表 4-31　水素ガス発生試験に使用材料

材　料	仕　様
高強度高緻密コンクリート	太平洋セメント(株)社製プレミックス品
普通ポルトランドセメント（OPC）	セメントペースト及びモルタル：一般社団法人セメント協会，研究用セメント
細骨材（OPC モルタル用）	珪砂：5 号珪砂（山川産業社掛津産）
練混ぜ水	OPC ペースト、OPC モルタル：イオン交換水 高強度高緻密コンクリート：上水道水

b.　試料調整

○　高強度高緻密コンクリート

基本配合で練混ぜを行った。練混ぜは、ホバートミキサーを使用し、1 バッチの練混ぜ量は 3L とした。練混ぜた試料は、打設後封緘養生した。養生期間の 1 週間程度前からφ6mm×13mm のペレットに調製し、その後濡れウエスに包んで保管、照射の 3 日前に表乾状態にして照射用とその他分析用をそれぞれチャック付きポリエチレン袋に保存、更に濡れウエスを入れたチャック付きポリエチレン袋にて材齢まで保管した。

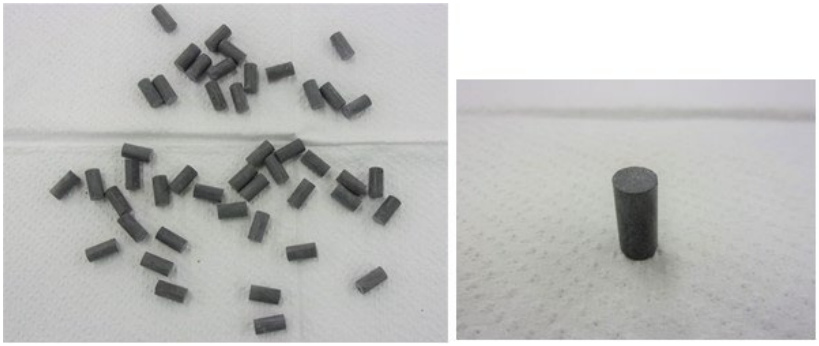


図 4-71　高強度高緻密コンクリートのペレット試料（養生期間 28 日）

○　OPC ペースト及び OPC モルタル

OPC ペーストは、W/C=0.45 とし、養生期間は 28 日とした。打設後、養生期間の 1 週間程度前から 850μm～1.18mm の小粒径とφ6mm×13mm のペレットに調製した。小粒径試料はその後口を輪ゴムで縛って密封したポリエチレン袋内で封緘養生し、照射 3 日前に照射用とその他分析用をそれぞれチャック付きポリエチレン袋に封入、更に濡れウエスを入れたチャック付きポリエチレン袋に封入して養生期間まで保管した。ペレット試料は、その後濡れウエスに包んで保管、照射の 3 日前に表乾状態にして照射用とその他分析用をそれぞれチャック付きポリエチレン袋に封入、更に濡れウエスを入れたチャック付きポリエチレン袋に封入して養生期間まで保管した。

OPC モルタルは、W/C=0.45、S/C=2 とし、養生期間は 28 日とした。打設後、養生期間の 1 週間程度前からφ6mm×13mm のペレットに調製し、その後濡れウエスに包んで保管、照射の 3 日前に表乾状態にして照射用とその他分析用をそれぞれチャック付きポリエチレン袋に封入、更に濡れウエスを入れたチャック付きポリエチレン袋に封入して養生期間まで保管した。OPC ペースト及び OPC モルタルの試料調整について表 4-32 にまとめる。

表 4-32　OPC ペースト及び OPC モルタルの供試試料

材料	試料名	養生期間	配合	形状	養生	その他
OPC ペースト	OP-小粒径-0.45	28 日	W/C=0.45	850μm～1.18mm に粒度を調整	封緘養生	乾燥工程無
	OP-ペレット-0.45			φ6mm×13mm のペレット		
OPC モルタル	OM-ペレット-0.45		W/C=0.45 S/C=2			

c.　ガス発生量の測定

○　試験方法

照射試験の試料容器は、図 4-72 に示すパイレックスガラス製容器を使用した。このガラス容器に底部から 5cm 程度まで試料を充填し、充填した試料の重量を記録した。なお、1 水準につき、繰返し数＝4 とした。水素ガスの透過性が低い APIEZON-H グリスを塗布した二方コックを取り付け、アルゴンガスで照射試験容器内のガスを置換し封入した（図 4-73）。

γ線照射は名古屋大学コバルト 60γ線照射室にて実施した（図 4-74）。照射線量は、試料の吸収線量として水換算値で 1kGy とした。

γ線照射後、1 日、3 日及び 7 日または 8 日経過後に、VARIAN 社製マイクロガスクロマトグラフ(CP-4900)で水素ガス濃度を定量した。ガスの採取は、二方コックの先端にブチルゴム栓を装着し、そこにニードルを挿入して行った（図 4-75）。別途測定した照射容器内の空間容積から発生した水素ガス量を算出し、N=4 の平均値をその試料の水素ガス発生量とした。

また、照射した試料の自由水を測定するため、照射に供した試料を 105℃で乾燥した。高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討での実施方法と同様に、105℃乾燥の際の重量減少値の乾燥前の試料重量に対する割合を自由水量とした。

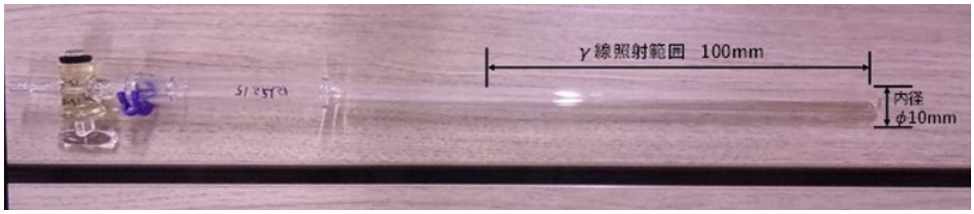


図 4-72　照射試験に使用したパイレックスガラス製照射試験容器

図 4-73　高純度アルゴンガスで照射試験容器内を置換している状況

図 4-74　照射施設の試料台に試料をセットした状況

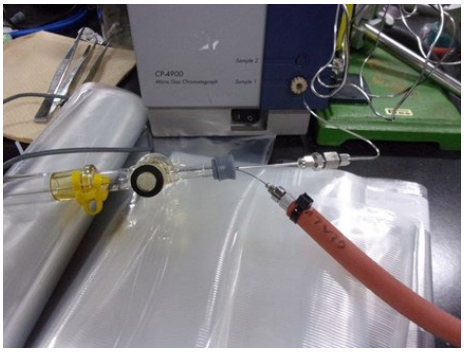


図 4-75　照射試験後の水素ガス濃度分析の状況

○　試験結果と考察

各試料の自由水量と累積水素ガス発生量（水換算の吸収線量）を表 4-33 に示す。自由水量の測定に試料の微粉砕は実施しなかった。

表 4-33　高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価の試験結果

試料名	自由水量	累積水素ガス発生量（μmol/g/kGy）							
		照射後1日		照射後３日		照射後７日		照射後８日	
	mass%	発生量	標準偏差	発生量	標準偏差	発生量	標準偏差	発生量	標準偏差
高-ペレット-28d	5.81	0.00068	0.00011	0.0015	0.00010	―	―	0.0025	0.000142
OP-小粒径-0.45	18.0	0.011	0.00029	0.011	0.000232	0.012	0.00002	―	―
OP-ペレット-0.45	20.3	0.0061	0.000433	0.0084	0.000156	0.0103	0.00010	―	―
OM-ペレット-0.45	7.96	0.0033	0.000317	0.0038	0.000164	0.0042	0.00007	―	―

照射施設や測定方法の違いによる影響を確認するために実施した、OPC ペースト及び OPC モルタルの測定結果を図 4-76 及び図 4-77 に示す。これらの図には令和 4 年度（原環センター, 原子力機構, 2023）の検討で得られた相関式に、表 4-33 に示した自由水量を代入して求めた水素ガス発生量も併せて示した。

図 4-76 に示すように、小粒径（0.85～1.18mm）試料では、照射終了後 1 日で過年度とほぼ同等の水素ガスが発生した。また、図 4-76 及び図 4-77 に示されるように、ペレット試料においては、照射終了から水素ガス発生量測定までの期間が短いと水素ガス発生量が過年度より少ない結果となったが、8 日間の累積値は過年度の値と同等の値となった。

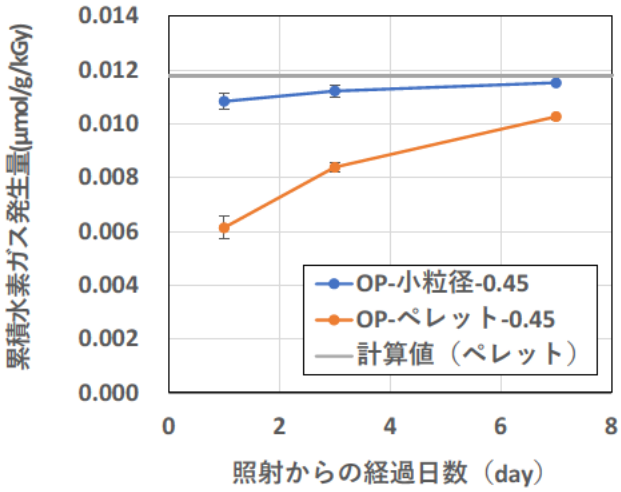


図 4-76　OPC ペーストの粒径と水素発生量の関係及び過年度との比較
（水換算の吸収線量ベース）

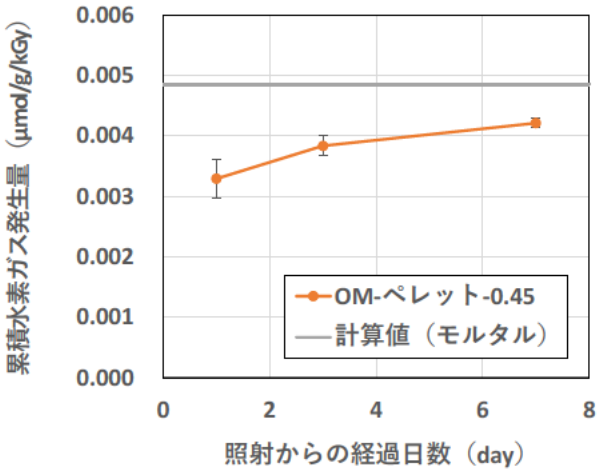


図 4-77　OPC モルタルの水素ガス発生量の過年度との比較
（水換算の吸収線量ベース）

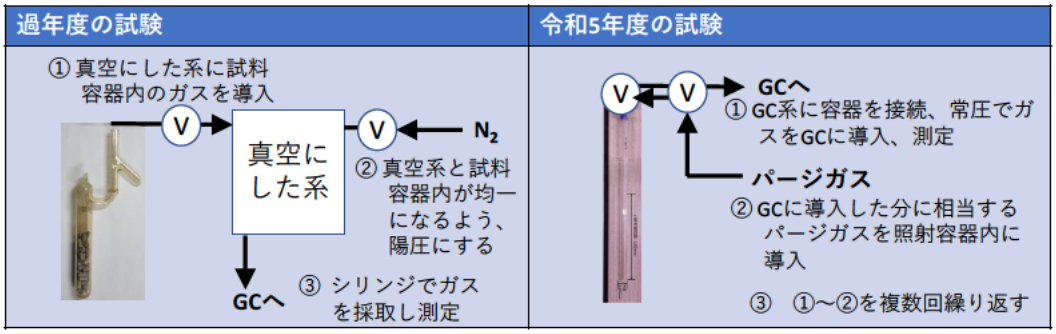
一方で、過年度の試験においては、照射終了から水素ガス発生量測定までの期間が 1 日であっても、令和 4 年度の検討で得られた相関式からは大きく外れない程度の水素ガス発生量であった。本試験の結果は N＝4 のばらつきが大きくはなく、リークは考えにくかった。

ここで、過年度と令和 5 年度の操作の差異を表 4-34 に示す。ここに示すように、γ線照射後に水素ガス濃度を測定する際のガス回収において、過年度は減圧下で実施していたのに対し、令和 5 年度は常圧下で実施した。これにより、試料内部で発生した水素ガスが、過年度は減圧していたため外部に放出されていたのに対し、令和 5 年度は外部に放出されにくかったのではないかと考えられる。小粒径試料では、試料内部から外部までの距離が短いため比較的短期間で水素ガスが試料外部に放出され過年度と同等の水素ガス発生量となったのに対し、ペレット試料では試料中央から表面までの距離が長いため、水素ガスが外部に放出されるのに時間を要したと考えられる。

以上のように、令和 5 年度は常圧でガスの回収を実施したため、減圧下でガスを回収した過年度と比較して、ペレット内部から水素ガスが出てきにくい状態にあったと考えられる。減圧状態

でのガス回収は困難であるため、細孔構造の違いによる水素ガス発生量への影響での高強度高緻密コンクリートの測定においては小粒径の試料を主体とし、γ線照射後 1 週間程度までに発生した水素ガス発生量を確認することとした。

表 4-34　過年度と令和 5 年度のガス回収方法の差異



本試験の各材料からの水素ガス発生量を図 4-78 に示す。図 4-78 は横軸に照射からの経過日数を取った。なお、前項にて OPC ペースト試料では、小粒径とペレット試料とで水素ガス発生量に差異が生じていたため、ここではペレット試料のみを示した。

図 4-78 から、OPC ペレット、OPC モルタル、高強度高緻密コンクリートの順で水素ガス発生量が少なくなっていた。OPC ペレットと OPC モルタルの水素ガス発生量の差異は、自由水量の差異に基づくものであると考えられる。

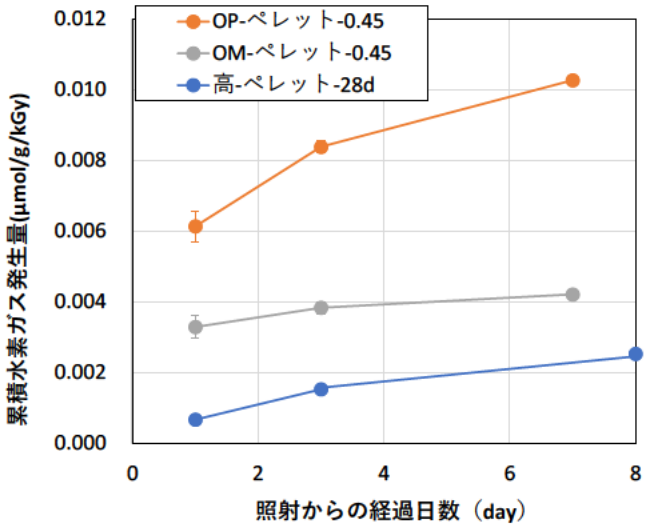


図 4-78　材料ごとの水素発生量（水換算の吸収線量）

(c)　細孔構造の違いによる水素ガス発生への影響

高強度高緻密コンクリートでは、バルク試験体とバルク試験体を粉砕した粉体試料では、水素ガス発生量が異なることが予測される。通常のコンクリートと高強度高緻密コンクリートの大きな違いの一つは、細孔構造の緻密さである。高強度高緻密コンクリートにおいて構造の緻密さが水素ガス発生量に大きく影響していることが想定される。ここでは、間隙率の異なると想定される材齢が異なる試料を作製し、間隙率の違いによる水素ガス発生量への影響について検討した。また、バルク試料と小粒径試料という形状以外の条件をできる限りそろえた試料を作製し、水素

ガス発生量を測定した。本検討での試験水準と分析項目を表 4-35 に示す。

なお、前述のように令和 5 年度はγ線照射後の水素ガス濃度測定に際し減圧下でのガス回収ができないため、ペレット状の高強度高緻密コンクリートでは水素濃度が低く、検出されない恐れがあった。また、過年度はバルク（φ5cm×10cm）試験体で実施しており、令和 5 年度の試験結果が過年度のデータの補完とはならない可能性がある。そこで、養生期間 3 日、7 日、28 日の水素ガス発生量の比較は小粒径試料で実施、水和の進行の違いによる影響を確認することとした。その際、γ線照射終了から 1 週間程度水素ガス発生状況を確認した。

・試験項目：自由水量、間隙率、γ線照射による水素ガス発生量

表 4-35　細孔構造の違いによる水素ガス発生量への影響検討の試験水準と分析項目

試料名	養生期間	自由水	水素発生量	細孔径分布	BET比表面積	FT-IR
高-小粒径-1d	1 日	○	—	水和挙動のデータを活用	—	—
高-小粒径-3d	3 日	○	○	水和挙動のデータを活用	○	○
高-小粒径-7d	7 日	○	○	水和挙動のデータを活用	○	○
高-小粒径-28d	28 日	○	○	水和挙動のデータを活用	○	○
高-ペレット-28d	28 日	○	○	小粒径のデータを活用	—	○

a.　使用材料

本試験試料の作製に用いた使用材料を表 4-36 に示す。

表 4-36　使用材料

材　料	仕　様
高強度高緻密コンクリート	太平洋セメント(株)社製プレミックス品
練混ぜ水	上水道水

b.　試料調整

基本配合で練混ぜを行った。練混ぜは、ホバートミキサーを使用し、1 バッチの練混ぜ量は 3L とした。その後の操作を、小粒径試料とペレット試料についてそれぞれ記す。

- 小粒径試料については、練混ぜ後タッパーに打設し、練混ぜの翌日に乾燥防止のため試料の上部に水を張った。材齢 3 日の試料は材齢 2 日前、それ以外の試料は材齢の 1 週間程度前から 850μm～1.18mm に粉砕・分級して粒度を調整し、口を輪ゴムで縛って密封したポリエチレン袋内で封緘養生した。照射 3 日前に照射用とその他分析用をそれぞれチャック付きポリエチレン袋に封入し、更に濡れウエスを入れたチャック付きポリエチレン袋に封入して材齢まで保管した。
- ペレット試料については、打設後封緘養生した。材齢の 1 週間程度前からφ6mm×13mm のペレットに調製し、その後濡れウエスに包んで保管し、照射の 3 日前に表乾状態にして照射用とその他分析用をそれぞれチャック付きポリエチレン袋に封入、更に濡れウエスを入れたチャック付きポリエチレン袋に封入して材齢まで保管した。

表 4-37　高強度高緻密コンクリートの供試試料

試料名	養生期間	配合	形状	養生	その他
高-小粒径-3d	3 日	基本配合	850μm～1.18mm に粒度を調整	封緘養生	乾燥工程無
高-小粒径-7d	7 日				
高-小粒径-28d	28 日				
高-ペレット-28d	28 日		φ6mm×13mm のペレット		

c.　試験方法

○　照射試験

照射試験については、(b)高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生の評価で実施した方法と同様の方法で実施した。

○　自由水量の測定

照射した試料の自由水を測定するため、照射に供した試料を 105℃で乾燥した。(a)高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討で実施した方法と同様に、105℃乾燥の際の重量減少値の乾燥前の試料重量に対する割合を自由水量とした。

○　細孔径分布

水和の進行程度に伴い変化する細孔径分布を確認するために、水銀圧入法により細孔径分布を測定した。(a)高強度高緻密コンクリートの水和挙動の検討で、小粒径試料を使用して細孔径分布を測定しているため、ここではそのデータを活用することとした。

○　BET 比表面積

小粒径試料をアセトンに浸漬して間隙水を溶媒で置換し、その後重量変化が認められなくなるまで真空乾燥して水和停止を実施した試料の比表面積を測定した。

試料を予め 105℃で乾燥し測定用試料とした。装置は micromeritics 社製 Flow Sorb Ⅲ 2305 を使用し、窒素吸着法一点式により BET 比表面積の測定を行った。

○　FTIR スペクトル

γ線照射を実施していない試料と実施した後の試料を同日に測定し、スペクトルの差異を比較した。メノウ乳鉢を用いて微粉砕した試料を測定に供した。赤外吸収スペクトルは、フーリエ変換赤外分光装置 FT/IR-6X（日本分光社製）を用い、ダイヤモンドを用いた全反射測定法（ATR 法）によって測定を行った。スキャン回数は 128 回、スキャン範囲は 400～4000cm^{-1} とした。

d.　試験結果と考察

○　各分析項目の測定結果

本検討の各分析項目の測定結果を表 4-38 に記す。

なお、水素ガス発生量については、水換算の吸収線量に基づく水素ガス発生量と、コンプトン効果を考慮した試料が吸収した線量に基づく水素ガス発生量を算出した。

コンプトン効果を考慮した吸収線量（D_s）は、水の吸収線量（D_{H_2O}）から以下の式により換算することが可能である。

$$D_s = \frac{(\Sigma Z/\Sigma A)_S}{(\Sigma Z/\Sigma A)_{H_2O}} \times D_{H_2O}$$

（式 4-6）

D_s：物質の吸収線量
D_{H_2O}：水の吸収線量
ΣA：原子量の総和
ΣZ：電子数（原子番号）の総和

水の場合、$(\Sigma Z/\Sigma A)_{H2O} = 10/18$ であり、それに対する試料の構成元素の $\Sigma Z/\Sigma A$ の比より、試料の吸収線量を求めることができる。

また、試料が吸収した線量に基づく G 値を見かけの G 値と定義して以下の式により求めた。表 4-39 にその結果を示す。

$$G_{H2}(All) = \frac{M \times N_A}{R_{All} \times 6.241506 \times 10^{16} \left(\frac{100eV}{J}\right)} \times \frac{1}{Wt_{All}}$$

（式 4-7）

G_{H2}(All)：試料が吸収した線量から発生した水素ガスの見かけの G 値
M：水素ガス発生量（mol）
N_A：アボガドロ数（6.0221415×10^{23} (1/mol)）
Wt_{All}：試料質量（kg),
R_{All}：コンプトン効果を考慮した試料の吸収線量(Gy=J/kg)＝Ds

表 4-38　各試料の自由水量、BET 比表面積と累積水素ガス発生量（水換算の吸収線量）

試料名	自由水量	BET 比表面積	累積水素ガス発生量（μmol/g/kGy）					
			照射後1日		照射後３日		照射後８日	
	mass%	m^2/g	発生量	標準偏差	発生量	標準偏差	発生量	標準偏差
高-小粒径-3d	4.39	11.72	0.0063	0.0018	0.017	0.0033	0.025	0.0037
高-小粒径-7d	3.92	8.59	0.0086	0.0011	0.015	0.0015	0.027	0.0019
高-小粒径-28d	4.79	5.31	0.0020	0.00021	0.0037	0.00020	0.0058	0.00034
高-ペレット-28d	5.81	-	0.00068	0.00011	0.0015	0.00010	0.0025	0.00014

表 4-39　コンプトン効果を考慮した試料の吸収線量での水素ガス発生量とみかけの G 値

試料名	累積水素ガス発生量（μmol/g/kGy）			見かけのG値G_{H2}(All)		
	照射後1日	照射後３日	照射後８日	照射後1日	照射後３日	照射後８日
高-小粒径-3d	0.0070	0.018	0.028	0.068	0.18	0.27
高-小粒径-7d	0.0095	0.016	0.030	0.092	0.16	0.29
高-小粒径-28d	0.0022	0.0041	0.0064	0.021	0.040	0.061
高-ペレット-28d	0.00075	0.0017	0.0028	0.0072	0.016	0.027

FT-IR の測定結果を図 4-79～図 4-82 に示す。図中には、水の-OH 伸縮振動に帰属する 4000～2800 cm^{-1} の範囲の拡大図もあわせて示す。水の-O-H 伸縮振動は、O-H 基と周囲の分子との相

互作用によってシフトする。放射線の影響により、自由水の減少や水素結合の変化など、O-H 基の周囲の環境が変化したことにより-OH 伸縮振動の変化が確認できるか、γ線照射を実施した試料と実施しなかった試料を測定した。今回の測定範囲においては、γ線照射の有無によるピークのシフト等の明確な変化は確認できなかった。今年度の測定は、中赤外領域（4000～400 cm-1）であったが、水分子の結合状態を敏感に観測できる近赤外領域（12500～4000cm-1）も測定対象とするなど、測定方法を検討することが必要であると考えられる。

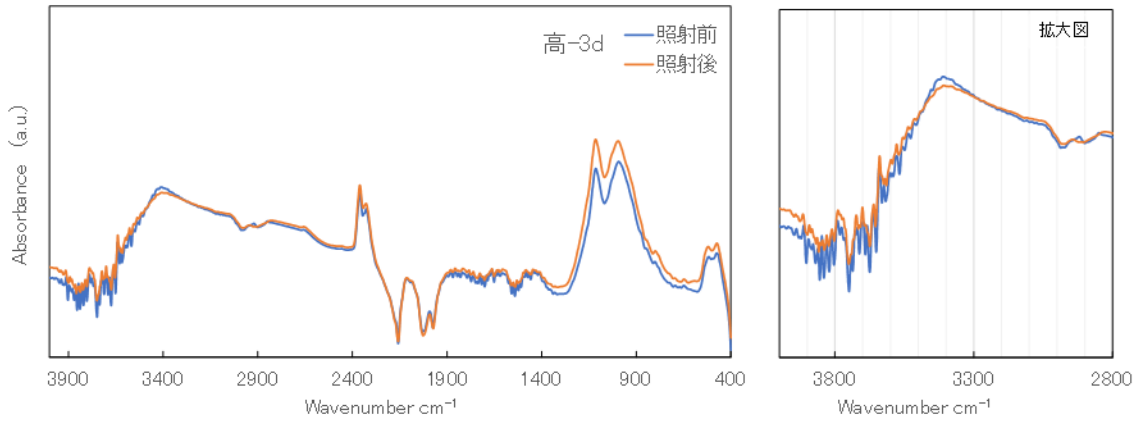


図 4-79　（養生期間 3 日）高-3d 試料の FT-IR 測定結果

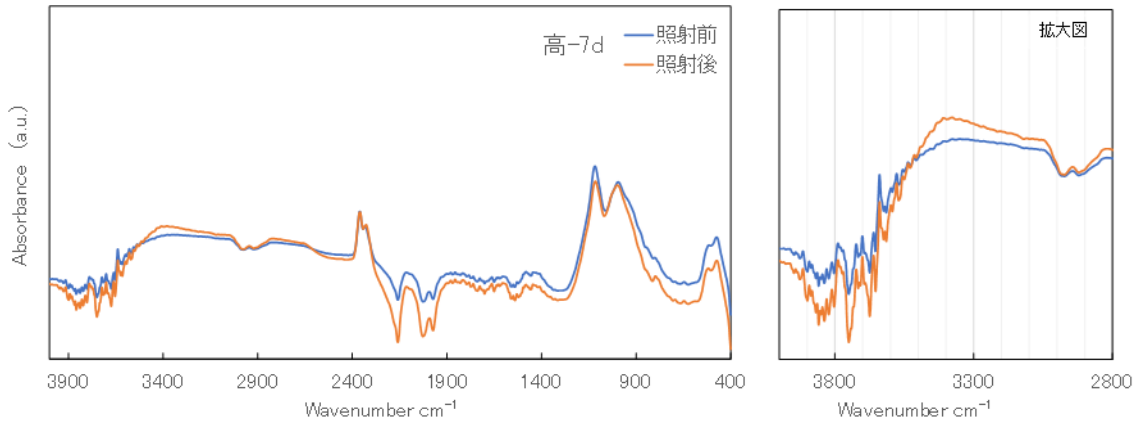


図 4-80　（養生期間 7 日）高-7d 試料の FT-IR 測定結果

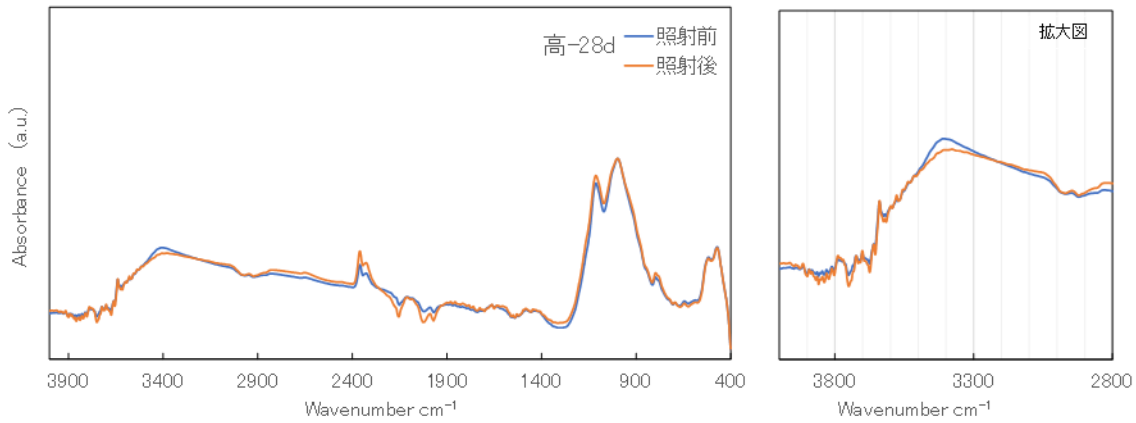


図 4-81　（養生期間 28 日）高-28d 試料の FT-IR 測定結果

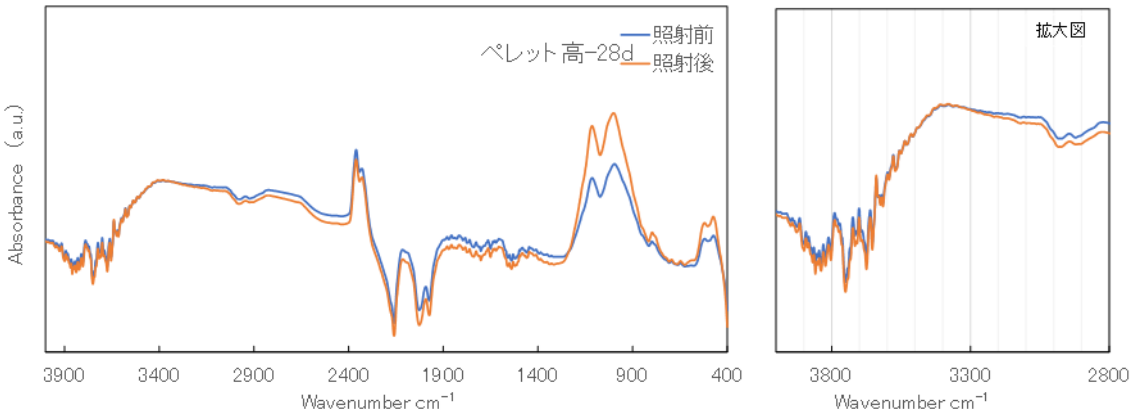


図 4-82　（養生期間 28 日）ペレット高-28d 試料の FT-IR 測定結果

○　高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生量

各試料の照射からの経過日数と水換算の吸収線量に基づく水素ガス発生量の関係を図 4-83 に、図 4-84 各試料の照射からの経過日数と水換算の吸収線量に基づく水素ガス発生量の関係を図 4-84 に、各試料の照射からの経過日数と見かけの G 値の関係を図 4-85 にそれぞれ示す。

小粒径試料を比較すると、養生期間 3 日と 7 日の水素ガス発生量は同程度で、水素ガス発生量が多い結果となった。養生期間 7 日の試料からの水素ガス発生は、照射から 8 日目の測定まで直線的に水素ガス濃度が増加しており、8 日目の累積水素ガス発生量は、養生期間 3 日の試料の水素ガス発生量を上回る結果となった。養生期間 28 日の試料では、水素ガス発生量は養生期間 3 日及び 7 日の試料の 1/5 程度であった。また、養生期間 28 日のペレット試料の水素ガス発生量は、同じ材齢の小粒径試料の 1/2 程度であった。何れの試料についても、試料内部に蓄積していたと思われる水素ガスが時間の経過とともに放出されていると思われる。本検討では 8 日までの累積水素ガス発生量をそれぞれの試料の水素ガス発生量として扱うこととした。

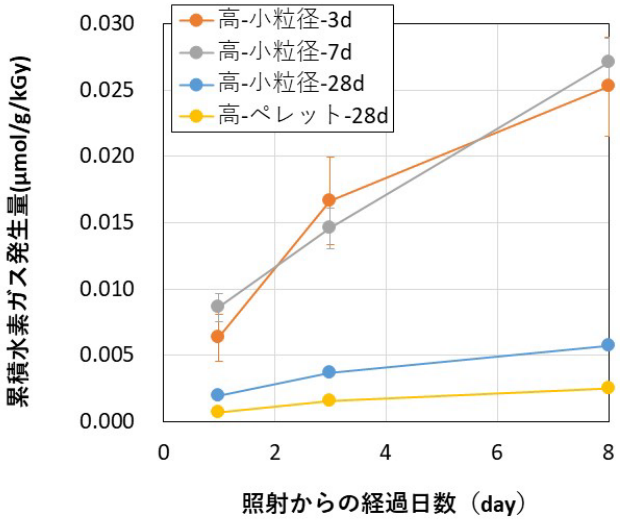


図 4-83　材齢および形状の異なる高強度高緻密コンクリートの水素発生量（水換算の吸収線量）

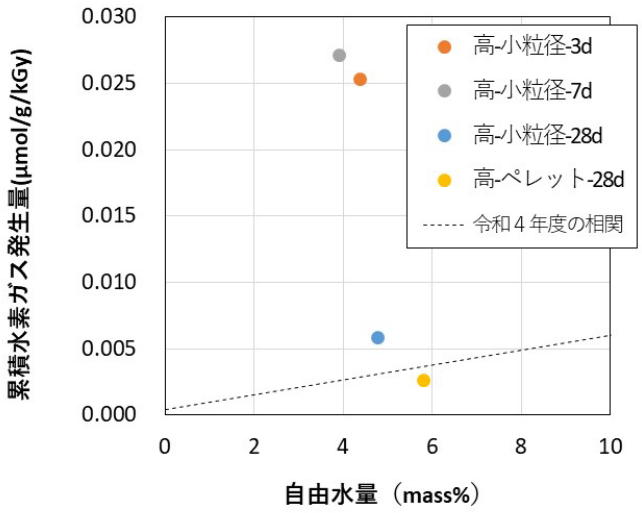


図 4-84　材齢および形状の異なる高強度高緻密コンクリートの水素発生量（コンプトン効果を考慮した吸収線量）

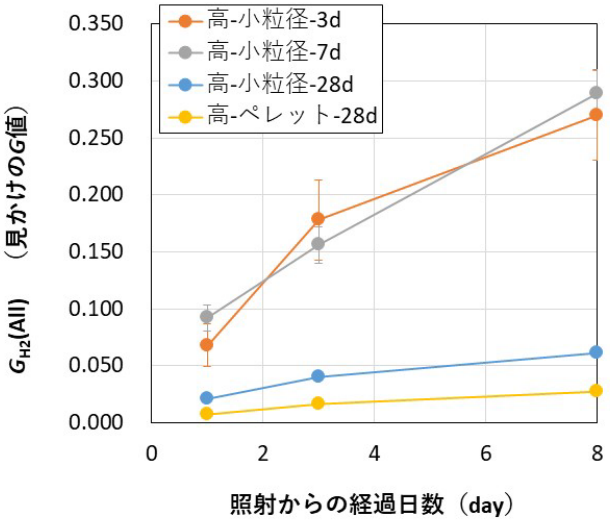


図 4-85　高強度高緻密コンクリートの見かけの G 値（G_{H2}(All)）（吸収線量はコンプトン効果を考慮した吸収線量）

○　自由水量と水素ガス発生量の関係

図 4-85 に試料が吸収したγ線のエネルギーに対する見かけの G 値（G_{H2}(All)）を示したが、これはコンプトン効果を考慮した吸収線量の水素ガス発生量（μ mol/g/kGy）を 0.1036 で割ることで算出できる。また、図 4-83 に示した水換算の吸収線量に対する水素ガス発生量と図 4-84 図 4-84 に示したコンプトン効果を考慮した水素ガス発生量は、後者が前者の 1.1 倍程度となるが傾向に差異はなかった。そこで、本節の以降の議論においては、過年度のデータとの比較が容易な水換算の吸収線量に対する水素ガス発生量に基づき議論を進める。

図 4-86 に、自由水量と照射後 8 日間の累積水素ガス発生量の関係を示す。前項に示したように照射試験後 8 日目までの累積水素ガス発生量は、試料内で発生した水素ガスの量になっていない可能性もあると思われるが、養生期間による水素ガス発生量の比較に用いた。養生期間 3 日及び 7 日の高強度高緻密コンクリートの小粒径試料からの水素ガス発生量は、OPC 系材料の自由

水量と水素ガス発生量の相関よりも多くの水素ガスが発生する結果となった。養生期間 28 日の小粒径試料は、試料内部に発生した水素ガスが残っている可能性もあるが、8 日目までの累積水素ガス発生量は OPC 系材料の自由水量と水素ガス発生量の相関よりもやや多いものの比較的近い発生量であった。また、養生期間 28 日のペレット試料は、OPC 系材料の自由水量と水素ガス発生量の相関と同程度の水素ガス発生量であった。

図 4-87 に令和 5 年度に実施した異なる材料の養生期間 28 日のペレット試料における自由水量と照射後 7 日間もしくは 8 日間の累積水素ガス発生量の関係を示す。いずれの材料も試料内部で発生した水素ガス発生量を過少評価している可能性があるが、図 4-78 に示されるようにおおむね水素ガス発生量に近いと考える。これらの材料からの水素ガス発生量は、いずれも過年度の OPC 系材料における自由水と水素ガス発生量の相関と同様の値を示していた。

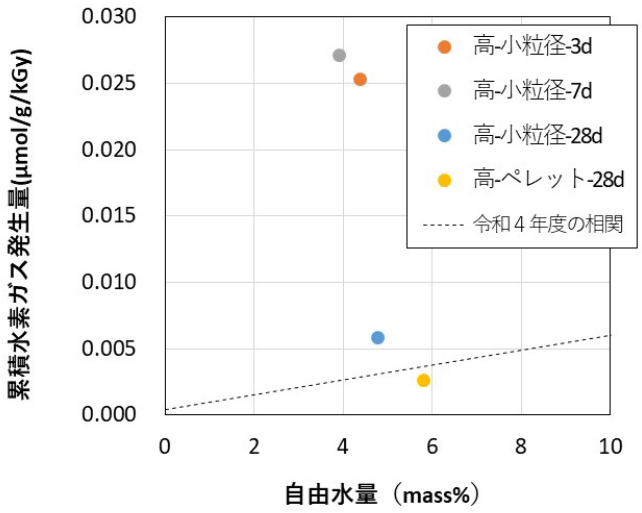


図 4-86　自由水量と照射後 8 日間の累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量）

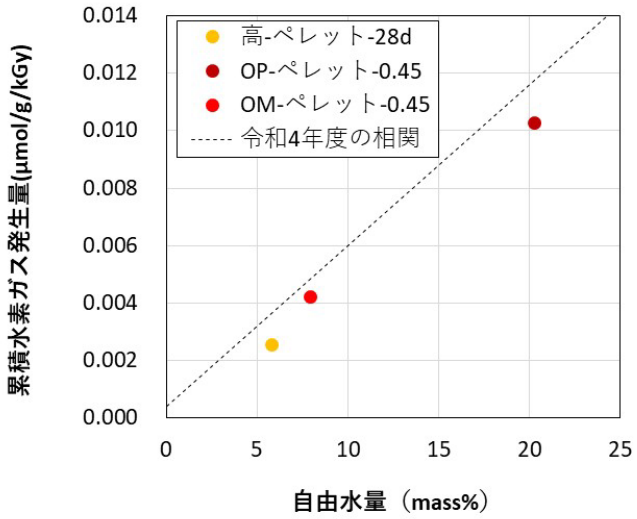


図 4-87　材料の違いと、自由水量と照射後 7 日または 8 日間の累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量）

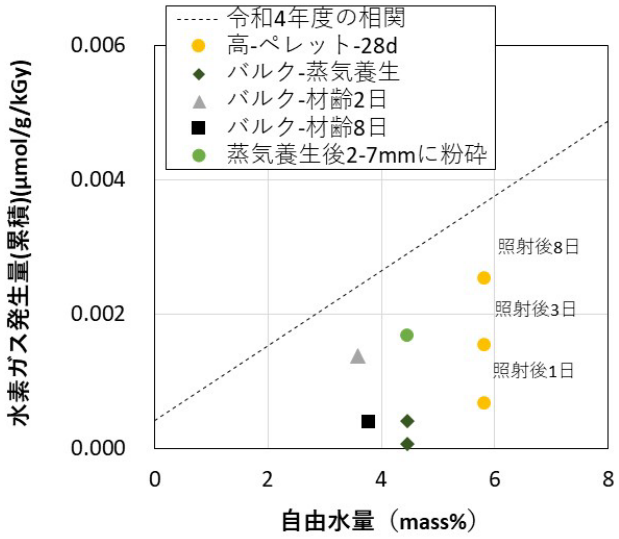
○　試料形状の影響

高強度高緻密コンクリートの水素ガス発生量の比較（水換算の吸収線量）を図 4-88 に、単位表面積当りの水素ガス発生量を表 4-40 に示す。

高強度高緻密コンクリートの水素ガス発生量については、図 4-87 では OPC 系材料と同様に自由水量が支配的要因である可能性が示された。一方で、令和 3 年度には OPC 系材料とは異なる傾向を示している。そこで、高強度高緻密コンクリートの試料形状と水素ガス発生量の関係を検討した。図 4-88 に、令和 3 年度及び令和 5 年度の高強度高緻密コンクリートからの水素ガス発生量と自由水量との関係を示す。ここでは、令和 3 年度との比較のため、水換算の吸収線量に対する水素ガス発生量を示す。令和 3 年度に実施した照射後 1～2 日後に真空系に回収した水素ガス発生量と、令和 5 年度の照射後 8 日後までの常圧下で回収した水素ガス発生量と比較すると、バルク（φ5cm×10cm）→粉砕して 2～7mm に粒度を調整した試料→ペレット（φ6mm×13mm）、の順に水素ガス発生量が増加している。

高強度高緻密コンクリートは、試験体内部で生成した水素ガスがその構造の緻密さにより外部に放出されにくくなっており、試料を小さくして拡散による移動距離が短くなるとで試料の外部に放出される水素ガス発生量が増加している可能性が考えられる。一方、令和 3 年度の高強度高緻密コンクリートに比べ令和 5 年度の試験に使用した高強度高緻密コンクリート試料は自由水量が多く、結合水量及び水酸化カルシウムの生成量の試験結果から、養生期間 7 日から 28 日の間の水和反応は緩やかに進展していると考えられる。

緻密な試料内部に存在する水素ガスは、試料のマトリックスを拡散して試料外部に放出されると考えられることから、単位表面積当りの水素ガス発生量について比較した。OPC 系材料の自由水量と水素ガス発生量の相関関係と傾向が異なる令和 3 年度に実施した常温養生練混ぜ後 8 日の高強度高緻密コンクリートの単位面積当たりの水素ガス発生量は、令和 5 年度の測定結果に比べて概ね 1/6 以下になっており、令和 5 年度の材令 28 日の試料は十分に緻密化が進んでいない可能性がある。



バルク試料：φ5cm×10cm（令和 3 年度報告）、
蒸気養生後 2-7mm に粉砕した試料：令和 4 年度自主研にて報告
過年度の試料は照射後 1～2 日で水素ガス濃度測定を実施

図 4-88　高強度高緻密コンクリートの水素ガス発生量の比較（水換算の吸収線量）

表 4-40　単位表面積当りの水素ガス発生量

実施年度	令和3年度実施				令和5年度実施
養生条件	常温養生 練混ぜ後2日	常温養生 練混ぜ後８日	蒸気養生①	蒸気養生②	常温養生 練混ぜ後28日
試料形状	Φ5×10cm				Φ0.6×1.3cm
試料の表面積 （$cm^{2)}$	196.25				3.01
自由水量（mass%）	3.58	3.78	4.46	4.46	5.81
吸収線量あたりの水素ガス発生量（μmol/g/kGy）	1.38E-03	3.83E-04	6.87E-05	4.04E-04	2.45E-03
吸収線量あたりの水素ガス発生量（μmol/kGy）	6.67E-01	1.83E-01	3.31E-02	1.93E-01	1.67E-02
表面積当たりの水素ガス発生量（$\mu mol/kGy/cm^2$）	3.40E-03	9.31E-04	1.69E-04	9.83E-04	5.53E-03
表面積当りのガス発生量の比 2023年度／2021年度	0.615	0.168	0.030	0.178	—

○　細孔構造と水素ガス発生量の関係

0.5μm 未満の細孔容積と累積水素発生量の関係を図 4-89、BET 比表面積と累積水素発生量の関係を図 4-90 にそれぞれ示す。

高強度高緻密コンクリートの 0.5μm 以下の空隙量は、時間の経過とともに減少しており、材齢 3 日に比べ養生期間 28 日の試料は、約 1/2 に減少している。セメント系材料の水和の進展の指標の一つと考えられる結合水量は養生期間 7 日まで急速に増加し、養生期間 7 日から 28 日の間には大きな変化は確認されていないが、微細な空隙は養生期間 7 日から 28 日の間も減少していることが確認された。また、セメント系材料の水和反応の指標と考えられる水酸化カルシムの生成量は、養生期間 1 日から 7 日にかけて増加しているが、養生期間 7 日から 28 日には生成量の増加は観察されていない。

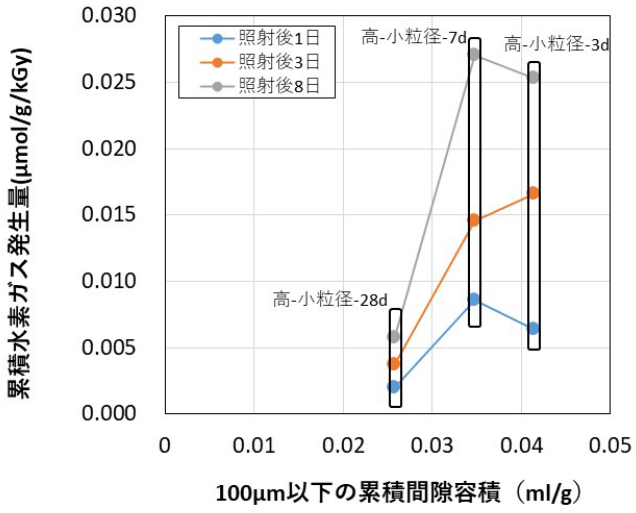


図 4-89　100μm 以下の細孔容積と累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量）

BET 比表面積も同様に、時間の経過とともに減少しており、養生期間 3 日に比べ養生期間 28 日の試料は、約 1/2 に減少している。0.5μm 以下の空隙量と同様に、養生期間 3 日から 7 日にかけては大きな変化は観察されていないが養生期間 7 日から 28 日の間に大きく減少していること

が確認された。

一方、水素ガスの発生量は、養生期間 3 日から養生期間 7 日にかけて僅かに増加し、養生期間 28 日では急激に減少しており、0.5μm 以下の空隙量の減少や BET 比表面積の減少とは必ずしも一致していないことが確認された。これらの結果から、放射線分解によって発生する水素ガスの発生量や試料内の水素ガスの移動速度は、構造の緻密さや BET 比表面積の影響には閾値が存在する可能性を示唆するものと考える。

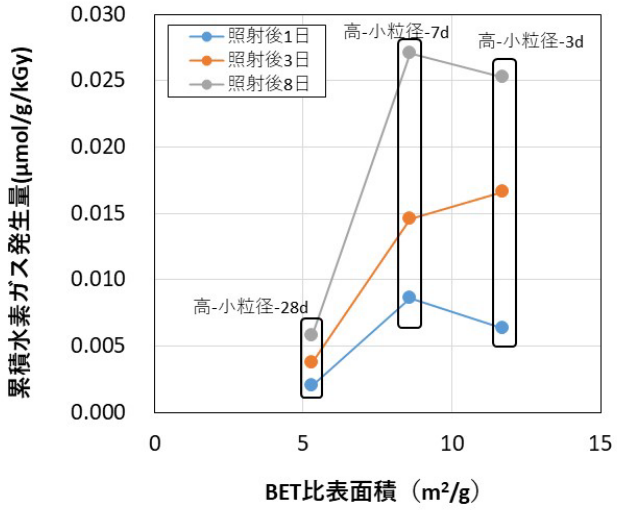


図 4-90　BET 比表面積と累積水素発生量の関係（水換算の吸収線量）

4.2.4.　　成果と今後の課題

(1)　代替固化処理技術の対象となる固型化材料の選定

TRU 廃棄物のうち特にグループ 4 Hに分類される発熱量の大きい廃棄物の代替固化処理技術の開発においては、既存の技術を改良して適用可能性を検討することとし、高発熱性の廃棄物のため熱影響が懸念されるもの、高い表面線量のために放射線分解が懸念されるもの、固化体の製造時のハンドリングや品質管理が難しいもの、大型の固化処理プラントが必要なもの等の懸念点がなく、セメント固化と同等の設備で固化処理が可能なジオポリマー固化及びセメント固化を対象とすることとした。

これらの二つの固化方法において、各固化処理技術に用いる固型化材料の基本特性に基づき、ガス発生量が低いもの、あるいはガス発生量の低減のため固化処理技術の改良の方向性が明確な特徴を有している以下の 5 種類の固型化材料を選定した。

ジオポリマー固化

・無機添加剤含有ジオポリマー
・分散剤添加高炉スラグジオポリマー
・乾式ジオポリマー
・メタカオリン系ジオポリマー

セメント固化

・高強度高緻密コンクリート

この代替固化技術の開発においては、強度や流動性をある程度保ちつつ、いかに放射線分解に寄与する固化体中の水分量を減らせるかという観点で現状の固型化材料による固化技術を改良することとした。今年度は、選定した各固型化材料のうち次年度以降に検討を予定しているメタカ

オリン系ジオポリマーを除く 4 種類の固型化材料を対象として、放射性分解ガス低減化のための固化処理技術の改良、ガス発生挙動に係る物性データの取得を実施した。

(2) 無機添加剤含有ジオポリマー

無機添加剤含有ジオポリマーは、無機添加剤としてホウ酸を添加することで、添加していない固型化材料と比較して、混練開始から混練物に流動性がなくなるまでの低粘度を維持する時間（可使時間）を長くできるだけでなく、固化体の水素発生を低くできることを確認しており、添加剤や骨材等の配合の検討により固型化材料の更なる改良が期待できる固型化材料である。

無機添加剤含有ジオポリマーの今年度検討した成果を以下にまとめる。

［ガス発生挙動に係る物性データの取得］

- EGA-MS 分析から、水が発生しなくなるには 600℃以上の高温での乾燥処理が必要になることが分かった。セメント試料は 400℃付近で Ca(OH)2 が分解するように、加熱により固型化材料から水が発生することもあるため、水の存在形態とその形態が加熱や放射線により分解するのかを確かめることが重要であると言える。
- 常圧での乾燥処理を想定した場合、高温まで加熱する必要が出てくるため、常圧&加熱以外での乾燥処理方法も視野に検討していく必要がある。どちらの試料も吸湿性材料のため、乾燥処理後の取り扱いについても考慮が必要である。
- 配合時の含水比を揃えた場合、硬化反応の違いにより、固化体の含水率に違いが出るため、配合時の含水比を変えるもしくは乾燥処理により含水率を調整して評価する必要がある。
- 過去研究事例との比較から、水素ガス発生量は約 1.3 倍の差異が生じていた。これは含水率と試料形状の違いが水素発生量の結果に影響したためと考えられる。
- 照射時の含水率や比表面積当たりの水分量で整理すると、無機添加剤としてホウ酸を添加したジオポリマー試料からの水素発生量は、添加していないものより小さくなることが確認できたが、固化体の含水率が高いため水相の直接影響が強く出てしまい、固相からの間接影響は小さかった。

(3) 分散剤添加高炉スラグジオポリマー

分散剤添加高炉スラグジオポリマーは、粒子分散効果のある混和剤（添加剤）によって硬化前の流動性と保持性を高め、水以外の方法で反応を制御し、混練水の添加量の抑制が可能なことから、放射線分解ガスの低減につながる固化体中の含水率の低下が見込める固型化材料である。

分散剤添加高炉スラグジオポリマーの今年度検討した成果を以下にまとめる。

［放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良］

- 自然乾燥条件での含水率は養生期間 28 日で 6~7%であった。また混錬 1 時間経過後の初期値から 28 日の養生期間において 2～4%程度含水率が低下することを確認した。また、フライアッシュより高炉スラグをより多く配合した試料の方が含水率は低くなる傾向がある。
- 流動性については、フロー試験の結果、混錬後 30 分以上、フロー値 150mm 以上の高い流動性を持つものが多い。時間ごとのフロー値から分散剤の影響が遅く出るものもあると考えられる。
- 機械的強度については、打設後 7 日間で一軸圧縮強度が 10MPa を超えており、十分すぎる強度を有している。
- 流動性や機械的強度にはまだ余裕があることからも、乾燥条件や配合の最適化で目標値である含水率 5%以下の固化体になるような改良は可能である。

(4)　乾式ジオポリマー

アルカリ刺激剤に水和物を含む粉末を用いることで(混練)水の添加を抑制することができる。ジオポリマーはセメントの水和反応と異なり脱水縮重合するため、原理上、硬化するための水が不要となることから、ガス発生量低減の観点で放射線分解に寄与する固化体中の水分量も減らせることを期待している固型化材料である。

乾式ジオポリマーの今年度検討した成果を以下にまとめる。

［放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良］

- 3 日間の加熱後大気養生した条件での含水率は養生期間 7 日で 16.0%、28 日で 17.6%であい、湿式のジオポリマーと比べると含水率がかなり高い。また、大気養生している間は分散剤添加高炉スラグジオポリマーとは逆で吸湿により含水率が上昇を続けている。
- 流動性については、混錬後数時間は粉体状である。施工上大きな問題はない。
- 機械的強度については、打設後 7 日間で一軸圧縮強度が 9.1MPa である。湿式のジオポリマーと比べると強度は劣るが、目標値の 1.47Mpa を超えており大きな問題はない。
- 模擬廃棄物（Na_2CO_3）を含まない配合を検討したが、固化時に材料分離が生じた。
- 湿式ジオポリマーは固化の際に膨張が発生する。今後、固化時の膨張の特性を把握し、実際の処理時に悪影響を及ぼす可能性がないか確認する必要がある。

(5)　高強度高緻密コンクリート

高強度高緻密コンクリートは、水和反応に寄与する粉体の量に対する水量が非常に少ない。水結合材比を水和反応の限界付近まで低くしていることで、空隙を極限まで抑えた最密充填により組織は高緻密となり、超高強度を実現している。そのため、一般のコンクリートように乾燥工程を設けなくても硬化後の自由水量が少なく、ガス発生量の低減が見込めるセメント系の固型化材料である。

高強度高緻密コンクリートの今年度検討した成果を以下にまとめる。

［ガス発生挙動に係る物性データの取得］

- 水和反応は養生期間 7 日まで大きく進んだのち、その後はゆっくりとではあるが進んでいるものと考えられる。養生期間 28 日の時点では、未水和物及び自由水が、高強度高緻密コンクリート中に存在していた。
- 高強度高緻密コンクリートの緻密さについては、養生期間 3 日緻密な硬化体を形成し、その後も水和の進行とともに間隙の少ない緻密な硬化体へと変化していることが確認された。
- 高強度高緻密コンクリートでは、自由水量が同等で養生期間が異なる試料において細孔容積及び BET 比表面積が小さいほど水素ガス発生量が少ないこと、試料形状の影響を大きく受けることを確認した。
- 照射試験から、水素ガス発生量は、形状の小さい試料では OPC 系材料の自由水量とガス発生量の相関関係に近い値となった。試料サイズの違いによって、水和の進展や水和による構造の緻密化が自由水量や水素ガス発生量に影響している可能性がある。

(6)　今後の課題

今後の課題として、各固型化材料についてガス発生量低減化のための改良ポイントと改良試験の計画を整理した。

1)　無機添加剤含有ジオポリマー

固化体に付着、または包含されている自由水である水相が放射線分解に寄与する主要な要因(直接影響）であるため、自由水量を削減する対策が必要である。一方、低含水率の固相を想定した

場合には、固相に対して水相の割合が極めて低いため、固相経由の間接影響についても考慮しておく必要がある。

水相（直接影響）の低減としては、（1）骨材を多孔質の材料（シャモット等）に変える等により、中心部からの脱水経路を確保して、乾燥効率化を検討すること、（2）固化体の大きさをパラメータとして、表面積と体積が異なる条件で乾燥処理の速度を求め、スケールアップの際の処理条件を検討することで、乾燥処理の条件の最適化を図ることを施策として考えている。（1）中心部からの脱水経路確保の狙いは、含水率の低減と乾燥処理の効率化が期待できると考えている。（2）乾燥処理速度の取得の狙いは、乾燥条件の最適化であり、熱や時間の効率化の観点で重要であると考えている。また、充填固化体の形状として 200L ドラム缶を想定しているものの、基礎試験の段階ではビーカースケール試験を実施する計画としており、スケールアップの影響の事前検討しておく必要がある。

固相からの間接影響の低減として、（1）無機添加剤の種類や量をパラメータとして調整し、軽元素のジオポリマーの配合を検討すること、（2）温度や雰囲気の制御により、ジオポリマーの微細構造（比表面積等）の物性を変化させることを施策として考えている。（1）軽元素ジオポリマーの配合検討の狙いは、全体の電子密度を小さくすることであり、その理由としては、高いエネルギーの放射線が固相に照射されると、構成元素中の外殻軌道電子と衝突して、コンプトン散乱により電子がはじき出され、その電子のエネルギーが水相中へ伝播した場合に、放射線分解により水素が発生するが、固化材料の構成元素に軽元素を選択し、電子密度を小さくすることで、この確率を減らし、間接影響の低減に繋がると考えているからである。

上記の改良のポイントと今年度の成果踏まえ、今後の試験計画を以下にまとめる。なお、改良試験については、次年度から着手する。

1. 配合及び添加剤の検討

（1）軽元素のジオポリマーの配合検討

極低含水率の固相からの間接影響の低減を目的として、ジオポリマー試料全体の電子密度を小さくするため、無機添加剤の種類や量をパラメータとして配合検討を行う。無機添加剤の選定基準としては、高 pH 領域（アルカリ性）で溶解する化合物で、メインの構成元素である Si や Al よりも原子番号の小さい軽元素を含む化合物を想定しており、添加することで電子密度を小さくする可能性のあるものを選定する。

（2）微細構造の調整のための配合検討

ジオポリマーの微細構造（比表面積等）等の物性を変化させるため、処理温度や雰囲気等の条件を検討する。低粘度維持時間の延長を目的として添加している無機添加剤として添加したホウ酸添加剤により、結晶化温度が変化したことから、添加剤種類と処理条件の関係も調査する。

2. 乾燥処理方法の検討

（1）脱水経路の確保

骨材としてこれまで 5 号珪砂を用いていたが、例えば多孔質の材料（シャモット等）等への変更により、中心部からの脱水経路を確保し、乾燥処理が効率的に実施できるかを確認する。ただし、多孔質材料を骨材として添加する場合には、骨材の水の吸収による混練粘度上昇が懸念されるため、置換率をパラメータとする等、変更の影響と効果のバランスを確認しながら、適用を検討する。

（2）乾燥処理の速度の取得による処理条件の検討

固化体の大きさをパラメータとして、表面積と体積が異なる条件で乾燥処理の速度を求め、スケールアップの際の処理条件を検討する。今年度実施した熱分解によるガス発生挙動の結

果から、乾燥処理のための加熱により、材料から水が生じることもあるため、乾燥処理による水の除去については、常圧での加熱以外の方法も視野に検討していく必要があると考えられる。また、どちらの試料も水と接触した際、アルカリ性を呈するため、空気中の水を吸湿する可能性があり、乾燥処理後の取り扱いについても今後検討する。

2) 分散剤添加高炉スラグジオポリマー

分散剤添加高炉スラグジオポリマーでは、自然乾燥/加温乾燥等の乾燥方法に寄らず、配合時の水分を減らすことがガス発生量低減化において最も効果があると考えている。また、水素発生に寄与する水分形態（水和物種など）や固化体の構造や水分分布を解析（例えば、中性子を使った三次元解析など）により把握することも重要である。

これらの改良のポイントと今年度の成果踏まえ、今後の試験計画を以下にまとめる。

1. 練り混ぜ水の低減
   アルカリ活性剤（水溶液）の改良等により、必要最低限の強度を確保しつつ混錬時水分を低減する方法を把握する。
2. 水分存在形態とガス発生量の関係の把握
   配合が及ぼす水分存在形態を把握して、照射試験による水素発生量との関係を評価する。
3. 乾燥条件の検討
   固化体全体を均質に乾燥させる技術について､乾燥条件を変えた試験等を実施して検討する。

3) 乾式ジオポリマー

乾式ジオポリマーの基本配合にある炭酸ナトリウムは模擬廃棄物として扱われているため、本来必要のない成分である。しかしながら予備試験において炭酸ナトリウムを除いた配合で混錬試験をしたところ、固化体に著しい材料分離が生じることが判明した。そのため、炭酸ナトリウムも必要な成分として扱う。

乾式ジオポリマーの改良のポイントとして、上記のように配合に自由度があまりないため、乾燥処理により固化体の含水率をどこまで低減できるかということになる。また、吸湿する可能性も確認する必要がある。

これらの改良のポイントと今年度の成果踏まえ、今後の試験計画を以下に示す。

1. 吸湿性の確認
   打設後に吸湿が終わる時間を把握する。
2. 乾燥条件の検討
   吸湿後に乾燥させる方法を抽出する。

4) 高強度高緻密コンクリート

高強度高緻密コンクリートについては現状でガス発生量が少ないデータが得られているとともに、配合の自由度がないため、現状の配合の変更は考えていない。また、緻密な構造のため乾燥による自由水量の低減も現実的に難しいため、乾燥工程についても加えることは検討しない。したがって、放射線分解ガスの低減のための固化処理技術の改良のための試験は予定していない。

一方、水和挙動や細孔構造の違いがガス発生量に影響している可能性が考えられるが、そのメカニズムが現状では十分解明できていないという課題がある。今年度の養生期間の異なる試料の結果から水和反応の進展に伴う構造の細密化とガス発生量の減少の傾向を確認したが、試料形状の違いの影響もあり、水和反応、自由水量及び結合水量、細孔容積及び比表面積とガス発生挙動がどのような相関があるのかはまだ十分解明できていない。ガス発生量の増減の要因と考えられるこれらの物理量との関係を明らかにするために、物性データの取得方法や試料調整方法についても見直しつつ、引き続き検討を進める必要がある。

4.3. 水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化

4.3.1. 背景と目的

処分場（図 4-91）におけるガスの発生・蓄圧、破過等に伴うニアフィールドへの影響が懸念される事項として、地下水が廃棄体パッケージ内の廃棄物に触れて核種が溶出したものである汚染水が、緩衝材中を移行する際に発生ガスの体積の分押し出されてしまい、拡散での移行よりも核種の移行が加速することや発生ガスの蓄圧により緩衝材が破過し汚染水の短絡移行経路を生成することが挙げられる。過去に実施したガス移行モックアップ試験により確認できた特徴的な現象としては、供試体からの排水量や破過の発生方向には方向による偏りが確認されたこと、ガス移行モックアップ試験での破過圧は 1 次元要素試験で観測したものよりも小さな値であったことである。これら確認できた現象を中心に、現象理解に基づいた緩衝材中でのガス・水移行評価手法を構築し、上記の懸念される事項について安全性の評価の信頼性を向上させることが本検討の目的である。

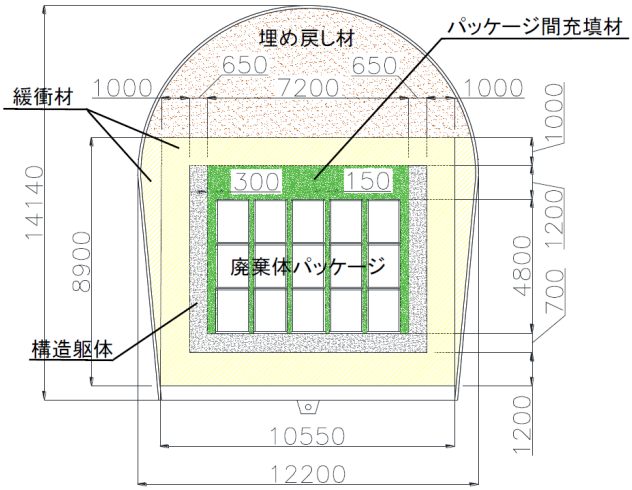


図 4-91 対象とする TRU 廃棄物の処分場の処分坑道断面（原子力発電環境整備機構 (2021) の抜粋：深成岩、先新第三紀堆積岩類における廃棄物グループ 2 の例）

4.3.2. 実施内容

(1) 水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化

1) 実施概要

処分場での状況を模擬すべく供試体の形状やガスの中央からの放出機構等を搭載し設計された、ガス・水移行の 3 次元的な影響が確認できるガス移行モックアップ試験（原子力機構・原環センター, 2019～2023）を過年度までに実施した。試験の実施により確認できた特徴的な現象として、供試体各面からの排水量や破過の発生方向には方向による偏りが確認されたこと、ガス移行モックアップ試験での破過圧は一次元要素試験で観測したものよりも小さな値であったことが挙げられる。方向による偏りの原因としては、均質になるように転圧し作成した供試体中でも、材料のばらつきや施工方法等の影響により供試体中に透過率の違いや相対的な弱部といったものがわずかながら存在し、ガス・水の優先的な移行経路となったと考察した。破過圧の値に関してはガス注入前の飽和緩衝材の膨潤圧相当の値となっており、供試体の拘束やガスの載荷方向による影響が少ない 3 次元的なベントナイト系では、ガスの移行に対する抵抗力は緩衝材の有効応力となっており、ガスは膨潤圧相当の圧力で緩衝材の端部に到達し破過に至ると考察した。

ガス移行モックアップ試験で見られた各面での排水量の差異は、施工に伴う材料のばらつきや

施工方法等による影響と考察し、１次元要素試験からモックアップ試験へと３次元系に系を拡大したことで確認された現象であり、処分場においても存在する影響であると考えられる。発生ガスによる懸念事項である汚染水の押し出しに伴う核種移行の加速を評価するにあたり、実証データ等に基づいて排水量に影響する要因を特定し、排水量への影響が最も大きい場合と小さい場合での幅を解析によって評価できれば、発生ガスによる排水量への影響の幅として捉えることができる。材料特性のばらつきなどによるガス・水移行挙動への影響要因の絞り込みとそれらの解析モデルへの反映手法を検討する。絶対浸透率の不均質性や応力による微小亀裂生成を考慮したモデルについて検討している事例（Damians et al., 2020）を参考とし、力学連成二相流解析コードである CODE_BRIGHT によるモックアップ試験レベルでの予測解析により、排水量に及ぼす影響の程度や評価方法の適用性を確認する。

ガス移行モックアップ試験では、飽和緩衝材の膨潤圧相当のガス圧で破過現象に至り、処分場においてもほぼ同様な現象となると想定している。処分場において、発生ガスが蓄圧することによって緩衝材が破過し汚染水の短絡移行経路を生成することが懸念されるが、モックアップ試験で確認した通りに緩衝材の破過は緩衝材の膨潤圧相当のガス圧で発生する現象で、ガス発生による著しい蓄圧を伴わない場合には、緩衝材の大きな変形・破壊には至らず、自己修復性への影響が小さいことが見込まれ、やがてガス圧の解消が進めば短絡移行経路は自己修復性によって閉塞し、核種移行への影響も大きくならないとの見通しが得られる。また、過年度のモックアップ再破過試験により破過後の自己修復性の発揮を確認したが、それは内部からガス圧が載荷されていない状態で供試体の再飽和を進めるという理想的な条件における結果であるという指摘があり、内部からガス圧が載荷されている状態等のより現実的な条件における自己修復性の発揮を確認するべきであると考える。処分場での安全性を説明するためにも、上述した破過現象に関する想定と現実的な条件下での自己修復性についての知見を積み上げるべくガス移行モックアップ試験を実施する。今年度はモックアップ供試体を製作および供試体の飽和を進めた。

2)　人工バリア施工試験の知見等を反映したモックアップ試験の予測解析

①　人工バリア施工試験データの収集・分析

ガス移行モックアップ試験で示唆された、一次元要素試験から系が拡大されたことに伴う、材料のばらつきや施工方法等による排水量への影響は、実処分施設スケールにおいても存在すると考えられることから、「緩衝材施工に伴うばらつきなど（施工継目や乾燥密度の分布）」について、実処分施設スケールや同規模な既往の人工バリア施工試験データから分析･整理することとした。

対象とする人工バリア施工試験について調査した結果、ベントナイト系材料については以下の事例が適切と考えた。

① 地下空洞型処分施設閉鎖技術確証試験（秋山, 2016）

② 地層処分施設閉鎖技術確証試験（原子力機構・原環センター, 2023）

具体的に、①地下空洞型処分施設閉鎖技術確証試験（原環センター, 2007～2015）では、中深度処分施設を対象とした実規模施工に係る試験のうち､緩衝材部の施工試験結果を調査対象とし、②地層処分施設閉鎖技術確証試験（原子力機構・原環センター, 2023）では HLW 処分施設を対象とした実規模施工に係る試験のうち、処分坑道の埋め戻し施工試験結果を調査対象とした。

①の事例（粒状ベントナイト：クニゲル GX を用いた施工）及び②の事例（ベントナイト混合土：クニゲル V1 と最大粒径 20 mm 以下で調整された模擬掘削土との混合材を用いた施工）の調査より、①及び②ともに吹付け工法では乾燥密度のバラつきは比較的少ないが、転圧工法では締固め方向（鉛直方向）に対して分布が生じる（上層ほど低くなる）可能性を示唆していることが分かった。（図 4-92）

一方で、モックアップ試験（原子力機構・原環センター, 2019～2023）から、水・ガスの移行が供試体の圧縮方向（締固め方向）に対して直角かつ供試体の作製継目を有する側部（左部）方向（水平方向）に卓越したことも判明している。

上記の知見を解析モデルに反映するため、モックアップ試験（ガス注入過程）の予測解析を実施し、ガス・水移行挙動や排水量に及ぼす影響の程度や評価方法の適用性を確認する。

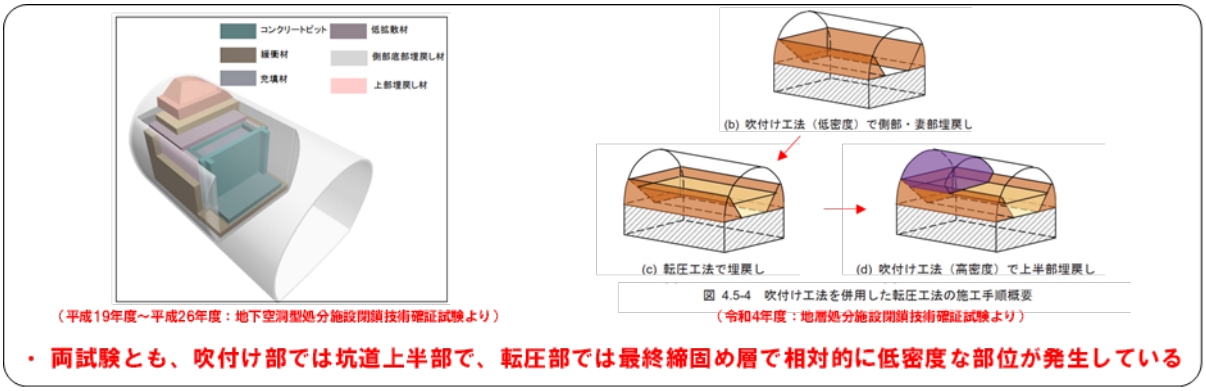


図 4-92　人工バリア施工試験データの分析結果のまとめ

②　分析結果の解析への反映手法の検討

(a)　モデル構成

分析結果を受けてガス移行モックアップ試験の予測解析手法への反映方法を検討した。

TRU 処分場における底部や側部の緩衝材の施工について、包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）では、類似施設に対する実規模での実証試験として地下空洞型処分施設閉鎖技術確証試験（秋山, 2016）が挙げられており、これらの技術開発を通じて施工技術の実現性の確認および目標性能を達成するための品質管理手法の蓄積がされており、処分場で求められる性能を満たした施工が可能であると述べられていることから、解析手法への反映について上述した事業の成果を参照することとした。

人工バリア施工試験結果より判明した「吹付け部では坑道上半部で、転圧部では最終締固め層で相対的に低密度な部位が発生している」との知見から、モックアップ試験の供試体の最終締固め層である「頂部」においても同様に低密度になる可能性を考慮し、頂部の水・ガス移行特性（透過性）を、鉛直方向（供試体頂部への鉛直方向）に対して相対的に増大するなどのモデル化手法を検討した。

一方で、過年度のモックアップ試験結果から、水・ガスの移行が供試体の圧縮方向（締固め方向）に対して直角かつ供試体の作製継目を有する側部（左部）方向（水平方向）に卓越したことも判明していることから、水・ガス移行特性（透過性）が圧縮方向に対して水平な側部（前後左右部）方向に増大するなどのモデル化手法を検討した。

上記の検討手法を解析モデルに反映するため、図 4-93 のように頂部・側部・底部に分割できる（各部に個別の物性条件を付与できる）モデル構成とし、特に側部（前・後・左・右部）については、水平方向の異方性を考慮可能とするため、図 4-94 のようにさらに 4 つに区分可能な構成とした。

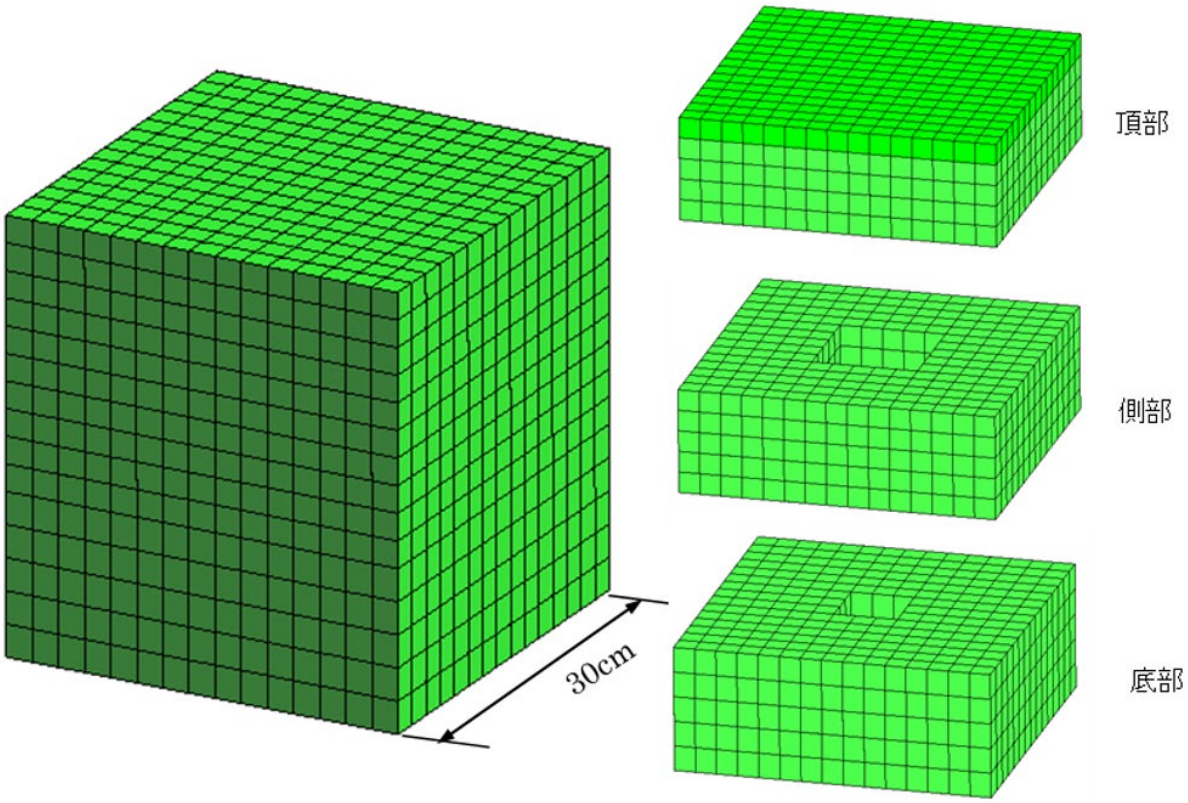


図 4-93　解析モデルの構成

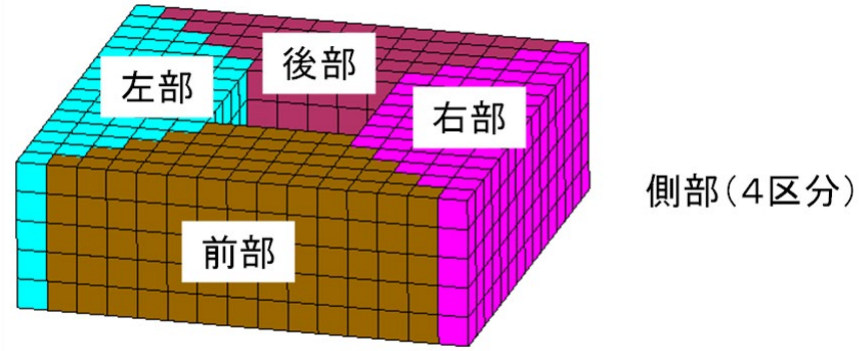


図 4-94　側部の解析モデルの構成

(b)　ミクロレベルでの亀裂生成の影響

本研究で用いる解析コードはスペインのカタルーニャ工科大（UPC）の地盤工学研究室で開発された力学連成二相流解析コードである CODE_BRIGHT（Olivella, 1995）とした。

既往の検討（Damians, 2020）では、ガス移行に伴う緩衝材中の応力（ひずみ）変化により微小亀裂が生じ、更に微小亀裂はガス移行挙動に影響を与える（絶対浸透率 k に影響を与える）ことが示唆されていることから、微小亀裂生成を反映した応力連成ガス移行解析を実施することで、より現実的な緩衝材挙動を考慮したガス移行挙動評価が可能になると考えられる。このことからミクロレベルでの亀裂の生成の影響について亀裂開口が及ぼす透過性（浸透率）変化を考慮した透過性モデルである「Fracture aperture model（亀裂開口幅依存絶対浸透率モデル、以下「Fa モデル」）」式(4-8)を考慮することとした。

$$k = k_{matrix} + \frac{b^3}{12a},\ \ b = b_0 + \Delta b \le b_{max},\ \ \Delta b = a\Delta\varepsilon = a(\varepsilon - \varepsilon_0) \qquad (4\text{-}8)$$

k ：媒体中に生じた亀裂の絶対浸透率（m²）
k_0 ：初期の絶対浸透率（m²）
k_{matrix} ：媒体のマトリックスの絶対浸透率（m²）
a ：モデルパラメータ（m）
b ：亀裂の開口幅（m）
b_0 ：初期の亀裂開口幅（m）
Δb ：初期亀裂開口幅からの増分（m）
b_{max} ：亀裂の最大開口幅（m）
ε ：ひずみ（ - ）
ε_0 ：初期ひずみ（ - ）
$\Delta\varepsilon$ ：初期ひずみ値からの増分（ - ）

ガスの移行に伴う緩衝材の小破過現象の表現として、GETFLOWS を用いた解析（原環センター,2022）では一定のガス圧を閾値として浸透率を変化させる Pathway dilation model を用いていたが、Fa モデルでは、式で示す通りガス移行における絶対浸透率 k の変化を取り扱うものの、ひずみレベルの変化に応じた緩やかなものとして扱うことができる。

具体的には、緩衝材中の応力（ひずみ）変化より微小亀裂の亀裂開口幅を算出し、その算出した亀裂開口幅を絶対浸透率に反映し、その絶対浸透率を要素に与えるモデルとなっている。なお、透過性が変化することによる水分特性変化 P についても、開口変化による絶対浸透率の変化率の三乗根と van Genuchten モデルの P0 との比によって式(4-9)のように表現することが可能である。

$$P = P_0 \frac{\sqrt[3]{k_0}}{\sqrt[3]{k}} \qquad (4\text{-}9)$$

(c) ガス移行特性の不均質性の考慮

ガス移行特性の不均質性の取り扱いについては、CODE_BRIGHT の有するモデル領域内に不均質性を考慮できる機能（地球統計学における空間的自己相関を用いて空間的な不均質性）を考慮することとした。CODE_BRIGHT で用いられている空間的不均質性の考慮は、確率論的な方法が用いられており、地域変数の理論（高阪，1999）による。なお、CODE_BRIGHT で不均質性が考慮される物理量としては、間隙率、絶対透過係数及び粘着力である。

③ 予測解析ケースの設定

解析手法についての検討結果を反映した予測解析ケースを表 4-41 に示す。ケース 1 は、供試体が完全均質媒体であることを仮定した基本ケースの位置づけである。ケース 2 は、供試体の水・ガス移行特性が水平方向（供試体側部の前後左右方向）に対して異方性を有すると仮定した場合の解析ケースである。ケース 3 及び 4 は、供試体の水・ガス移行特性が鉛直方向（供試体頂部への鉛直方向）に対して異方性を有すると仮定した場合の解析ケースである。一方でケース 5 は、

供試体中の不均質性ではなく、後述する供試体へのガス注入パターン依存性に着目し設定した予測解析ケースである。

図 4-95 に過去に実施したガス移行モックアップ試験でのガス注入過程における排水量観測結果（原環センター, 2021）を示す。ガス注入過程では、ガス圧を一定ペースで昇圧しながら載荷し、飽和した供試体からの排水量等を観測する。観測値の特徴として赤点線枠内での排水量の卓越が確認されるが、これは二相流による排水のみではなく、ガスの載荷による供試体の圧縮変形に伴う排水が多く含まれていると考察される。35 日経過までのガス圧の昇圧ペースが供試体の圧縮変形を起こしてしまうほどに早い昇圧ステップとなってしまっており、この現象は載荷ガスの昇圧ペースを緩やかにすれば解消されると考えられる。

そこで、過去に実施したガス移行モックアップ試験でのガス注入設定である実績パターン（原環センター,2021）よりも、排水量の卓越が観測され始める注入ガス圧である 0.4MPa 時点からの昇圧ペースを緩やかな昇圧ステップとしたものを感度解析ケースとして試行した。今後のガス移行モックアップ試験のガス注入過程の実施する際の参考とすべく、排水量のガス注入パターン依存性（変形による排水が抑えられ、気液二相流による排水が卓越するか否か）について把握するため解析ケース 5 を実施した。

表 4-41　解析ケース設定

<table>
<tr><th rowspan="2">解析条件
ケース名称</th><th rowspan="2">解析モデル頂部</th><th colspan="4">解析モデル側部</th><th rowspan="2">解析モデル底部</th><th rowspan="2">二相流パラメータ</th><th rowspan="2">ガス注入パターン</th><th rowspan="2">備考</th></tr>
<tr><th>前部</th><th>後部</th><th>左部</th><th>右部</th></tr>
<tr><td>ケース 1</td><td colspan="6">・不均質性モデル考慮無し（各部均質）
・亀裂モデル考慮無し</td><td>2023 年度同定値</td><td>2021 年度実績パターン</td><td>基本ケース</td></tr>
<tr><td rowspan="2">ケース 2</td><td colspan="6">不均質性モデル考慮無し（各部均質）</td><td rowspan="2">2023 年度同定値</td><td rowspan="2">2021 年度実績パターン</td><td rowspan="2">水平方向への異方性考慮ケース</td></tr>
<tr><td>亀裂モデル考慮無し</td><td colspan="4">亀裂モデル考慮有り</td><td>亀裂モデル考慮無し</td></tr>
<tr><td rowspan="2">ケース 3</td><td>不均質性モデル考慮有り</td><td colspan="5">不均質性モデル考慮無し（頂部以外は均質）</td><td rowspan="2">2023 年度同定値</td><td rowspan="2">2021 年度実績パターン</td><td rowspan="2">鉛直方向への異方性考慮ケース</td></tr>
<tr><td colspan="6">・亀裂モデル考慮無し</td></tr>
<tr><td rowspan="2">ケース 4</td><td colspan="6">・不均質性モデル考慮無し（各部均質）</td><td rowspan="2">2023 年度同定値</td><td rowspan="2">2021 年度実績パターン</td><td rowspan="2">鉛直方向への異方性考慮ケース</td></tr>
<tr><td>亀裂モデル考慮有り</td><td colspan="5">亀裂モデル考慮無し（頂部以外は亀裂無し）</td></tr>
<tr><td>ケース 5</td><td colspan="6">・不均質性モデル考慮無し（各部均質）
・亀裂モデル考慮無し</td><td>2023 年度同定値</td><td>試行パターン</td><td>ガス注入条件影響考慮ケース</td></tr>
</table>

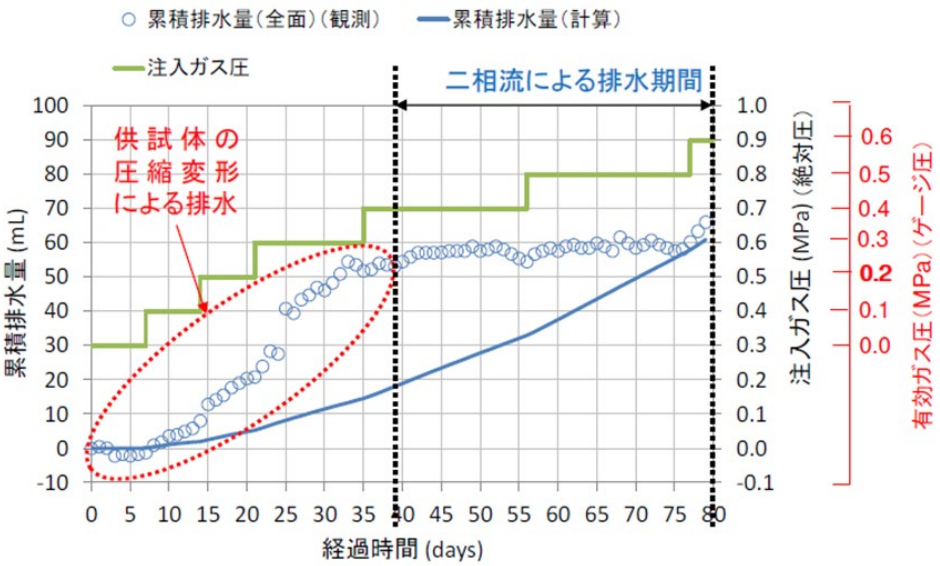


図 4-95　過去のモックアップ試験の排水量観測結果

④　　予測解析結果

供試体からの累積排水量の予測解析結果を図 4-96 に示す。

供試体が完全均質媒体であることを仮定した基本ケースの位置づけであるケース 1 では、過年度の実測で見られた挙動と同様に、試験開始から 35 日経過後までの期間はガス圧載荷に起因した供試体の変形に伴う排水が生じ、それ以降は供試体へのガス浸入を伴った気液二相流による排水が継続する結果となった。

供試体の水・ガス移行特性が水平方向（供試体側部の前後左右方向）に対して異方性を有すると仮定したケース 2、並びに供試体の水・ガス移行特性が鉛直方向（供試体頂部への鉛直方向）に対して異方性を有すると仮定したケース 3 及び 4 では計算が不安定となり、予測解析が困難な結果となった。不安定となった要因として、Fa モデルおよび均質モデルは解析モデルの全要素への適用を前提としたものであるため、頂部や側部といった特定領域要素のみへの適用性が低かったことによると考えられる。計算の収束性を高めるために、特定領域要素毎への各モデルの適用性を高めることが解析手法としての今後の課題であり、そのためには、特定領域要素毎にモデルを設定可能となるようにコードを改善するといった対処となる。

供試体へのガス注入パターン依存性を考慮したケース 5 では、供試体への試験開始から見られる排水量の増分はケース 1 と比較して緩やかな結果が得られた。最終的にはおよそ 30ml ほど累積排水量の差がみられ、フィッティングによって二相流パラメータを同定する際には無視できない量と考えられる。ガス注入過程において、気液二相流による排水現象の詳細把握を優先する場合には緩やかな昇圧ペースを設定することも重要と考えられる。一方で、処分場においては、蓄圧したガスが一気に載荷される現象も想定され、それに伴う破過圧や排水量への影響も存在すると考えられることから、把握したい現象に応じて試験条件を設定することが重要である。

CODE_BRIGHT の有するモデル領域内に不均質性を考慮できる機能を適用し解析を実施したが解析が収束せず、解析手法の適用性を確認できなかった。また、材料や施工に伴うばらつきの影響という観点で現象を捉えるには、実処分施設スケールでの緩衝材の施工データは数が限られており、緩衝材中のガス・水移行に関するデータに関してはさらに限られる。ガス移行モックアップ試験で各面ごとの排水量に偏りが見られたというのは特徴的な観測結果ではあるが、緩衝材

中での発生ガスによる押し出しに伴う汚染水移行の加速という課題においては、ガス移行モックアップ試験での供試体全体からの総排水量（処分場ならば緩衝材全体からの排水量に相当）やガスの総注入量に着目することも重要と考える。飽和した緩衝材中でのガスの移行形態について、ガス圧が低い状態であれば、注入したガスは水中に溶解し、液相の拡散による移行が支配的な移行形態となると考えられる。ガスが水中に溶解している場合はその体積分の押し出しによる排水の加速やガスの載荷に伴う供試体の圧縮による排水には寄与しない。供試体からの排水現象に寄与するガス圧やガスの注入量についてガス移行モックアップ試験で実証データや考察を積むといったアプローチで、発生ガスによる排水量への影響を現実的に評価することを目指すことは処分場の安全性の説明への寄与として有用と考える。

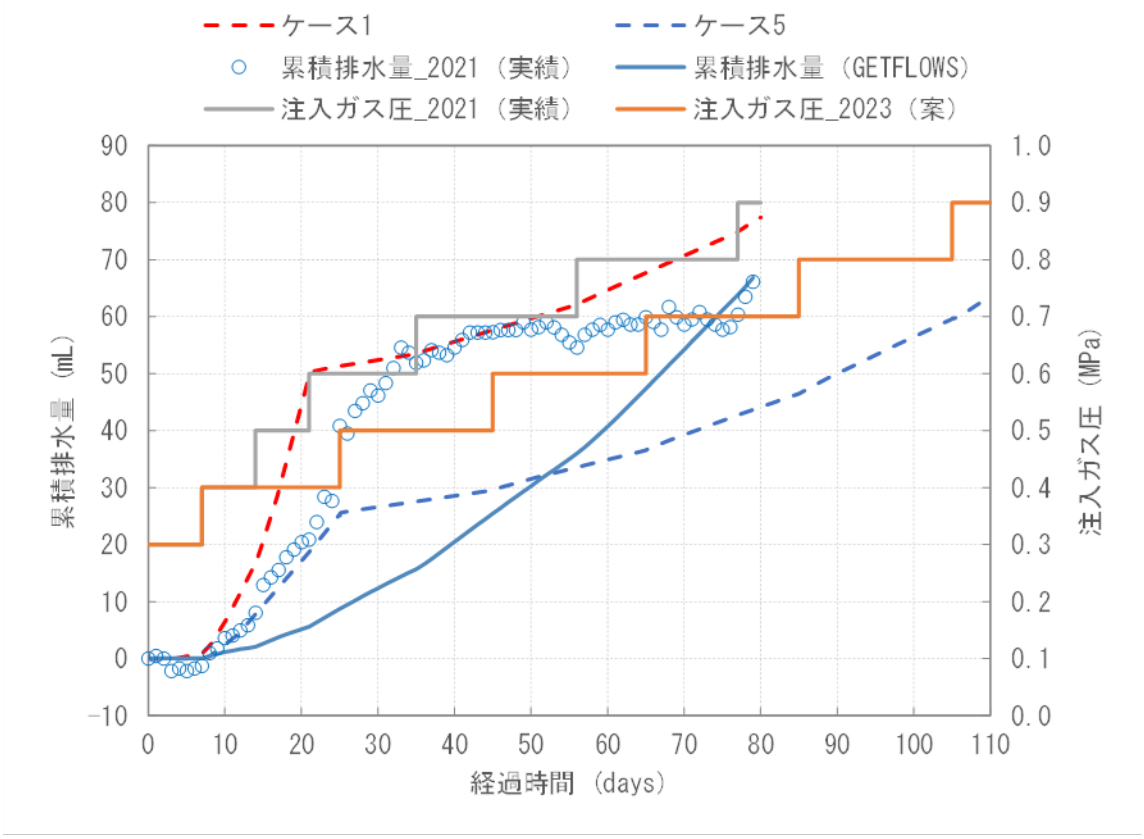


図 4-96　供試体からの累積排水量の予測解析結果

3)　水理-力学連成ガス移行解析モデルの高度化に向けたガス移行モックアップ試験の実施

①　試験体の作製

ガス移行モックアップ試験体（以下「供試体」）の作製について記述する。対象とする供試体は、図 4-97 に示す「小規模モックアップ試験装置」と同等な装置を用いて成型することとした。供試体は底部・側部（前後左右）・頂部に分類される。

供試体（緩衝材模擬部：高さ 320 mm、幅 300 mm×300 mm）の配合は、包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）に示された緩衝材仕様［ベントナイト（クニゲル V1）：ケイ砂（3 号と 5 号ケイ砂を乾燥重量比 1：1 で混合したもの）＝70 wt%：30 wt%］とし、全 7 層に分けて圧縮成型する。なお、各層の材料は、圧縮成型後に乾燥密度 1.6 Mg/m3、飽和度 95%となるよう計量・加水（イオン交換水）調整したものを準備・使用した。

供試体の成型手順は以下の通りとした。（図 4-98）

1：「頂部フランジ」部及び「廃棄体模擬部」を除く試験容器全体を組み立てる
2：供試体のうち「①～③」部（底部）を 40 mm ずつ圧縮成型（全高：120 mm）する
3：模擬廃棄体部（土圧計＋ガス注入管を含む）を設置する
4：供試体のうち「④～⑤」部（側部）を 50 mm ずつ圧縮成型（全高：100 mm）する
5：供試体のうち「⑥～⑦」部（頂部）を 50 mm ずつ圧縮成型（全高：100 mm）する
6：「頂部フランジ（土圧計 5 個・ポーラスメタルを含む)」部を組み立てる

供試体の作製過程イメージを図 4-99 に示す。図に示すように、供試体は油圧ジャッキによる性的圧縮により作製した。

供試体の作製（1 層目～7 層目）は以下の手順で進めた。
1：含水比調整した試料を装置内に投入・敷き均し
2：載荷版（押し鉄板）設置
3：載荷治具の搭載
4：載荷ジャッキ搭載(ジャッキ揚程 100 mm、2 ケ)
5：ジャッキによる載荷
6：供試体所定高さに到達後、載荷装置撤去（以降、「1)」からの繰り返し）

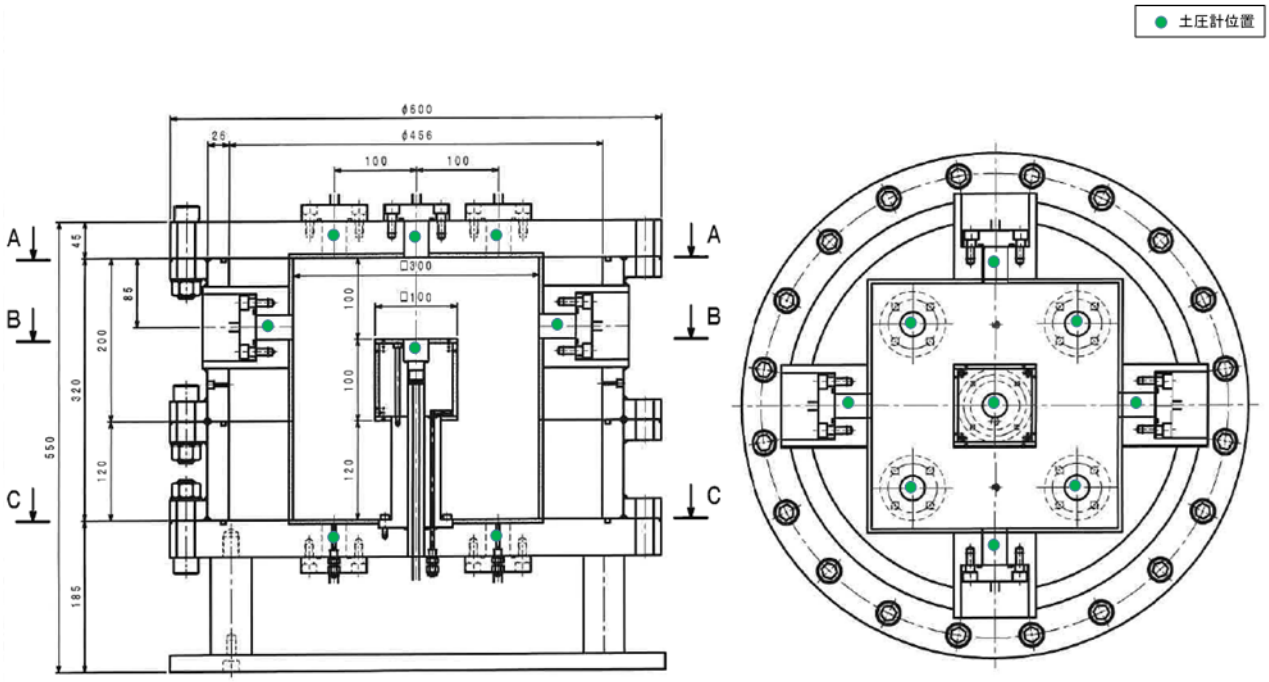


図 4-97　ガス移行モックアップ試験装置（原子力機構・原環センター，2019～2023）と供試体の縦断面図（左）及び側部の横断面図（右）

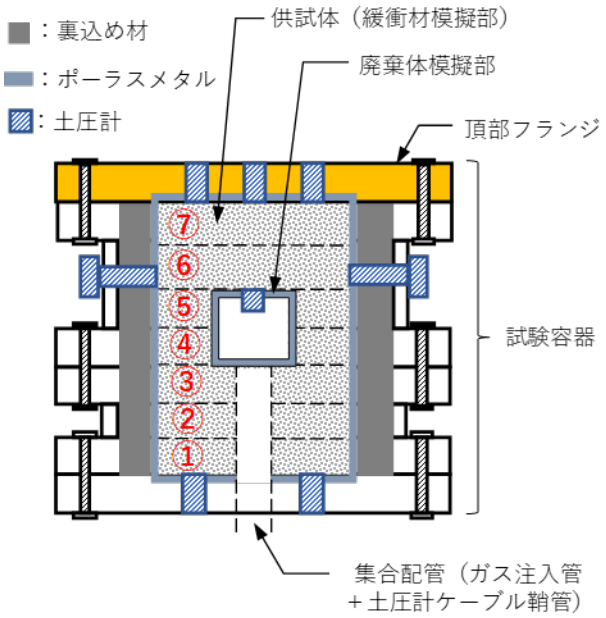


図 4-98　小規模モックアップ供試体の成型概要図

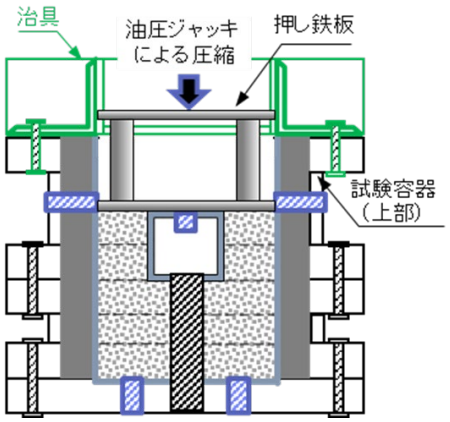


図 4-99　供試体の作製過程イメージ

② 再冠水試験

供試体を飽和させることを目的とする再冠水過程において取得したデータの整理と、グラフにもとづく試験中における供試体の吸水膨潤挙動の考察について記述する。図 4-100 に示す通り、供試体への注水は外周のポーラスメタルを介して供試体中への浸透を経て、内周のポーラスメタルより排水させることにより実施した。通水中の注・排水量経時変化は、注水圧とともに各々の計測システムにより取得した。

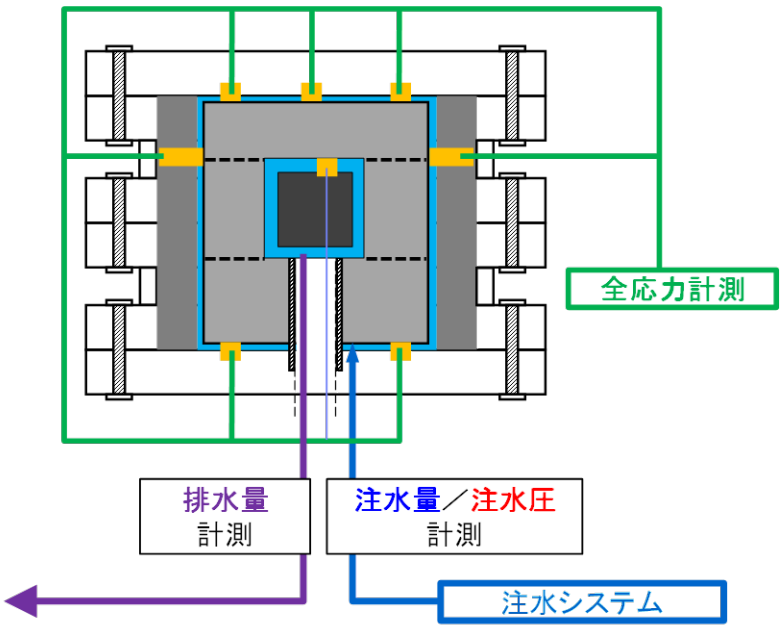


図 4-100　再冠水過程におけるモックアップ試験状況のイメージ

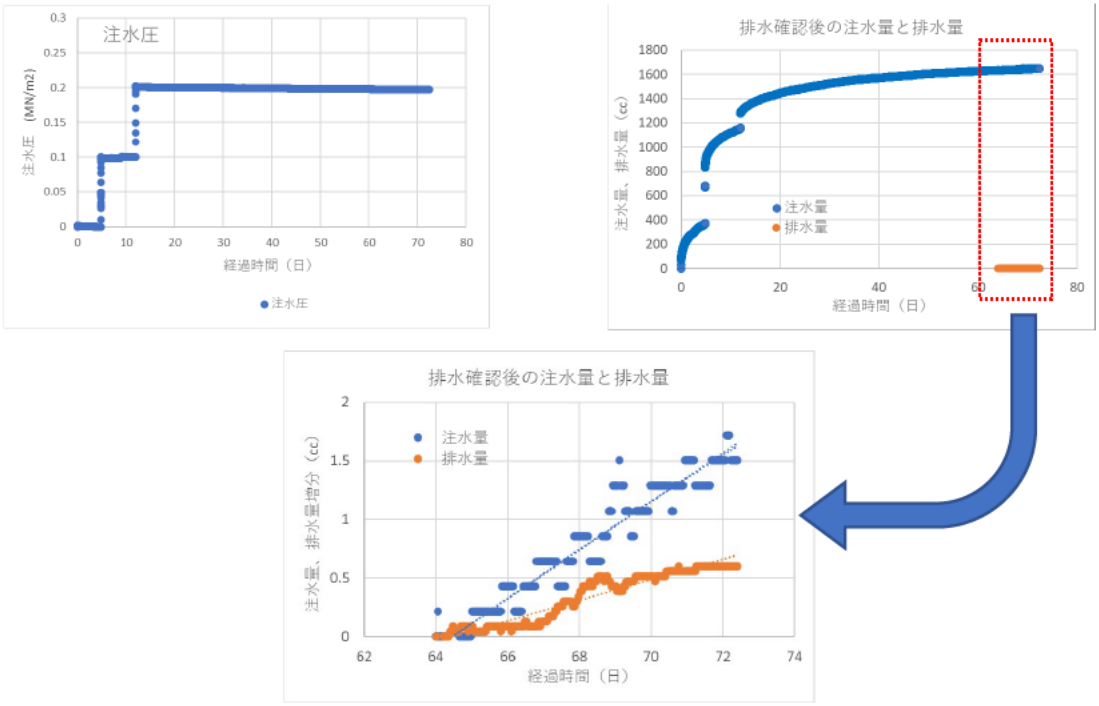
また、供試体の各面には土圧計（全応力計）が 14（頂面：5、内側頂部：1、前後左右面：各 1 ずつの小計 4、底面：4）設置されており、供試体の吸水に伴う膨潤圧の発揮状況を土圧計計測値の経時変化を取得することで評価した。

注水開始以降の時系列について表 4-42 に、注水開始より 72 日経過時点の各計測システムでの計測状況（各取得値の経時変化）を図 4-101 に示す。

供試体への注水挙動（累積注水量の経時変化）及び供試体からの排水挙動（累積排水量の経時変化）は順調に推移しており、供試体各面の土圧計測定値もほぼ同一の増加（供試体の吸水に伴う膨潤圧の発達に起因する）傾向を示していることから、供試体は完全飽和に（且つ各部とも概ね均質に）到達しつつあると考える。

表 4-42　注水飽和過程の時系列

概要	詳細	備考
供試体外周の各ポーラスメタル部のみへの注水飽和	・2023 年 11 月 8 日 1) 11:16 底面 2) 11:21:13 側面下段（右面→前面） 3) 11:25:57 側面下段（後面→左面） 4) 11:34:32 側面上段（右面→前面） 5) 11:57:14 側面上段（後面→左面） 6) 12:04:00 頂面	
注水開始	・2023 年 11 月 8 日 13:30　注水開始 （底面→側面→頂面、注水用ビューレット高さによる自然水頭圧にて）	注水開始よりの経過日数：0 日
加圧注水開始（昇圧：0.1MPa）	・2023 年 11 月 13 日 1)　9：30　昇圧（自然水頭圧→0.05MPa） 9：40　昇圧（0.05→0.1MPa）	注水開始よりの経過日数：5 日
昇圧（0.2MPa）	・2023 年 11 月 20 日　13:07 昇圧 （以降、0.2 MPa を維持して注水継続中）	注水開始よりの経過日数：12 日
供試体からの排水確認（排水量測定開始）	・2024 年 1 月 11 日 13:56 より測定開始	注水開始よりの経過日数：64 日



（参考：経過日数 64 日～72 日までの透水係数：
注水量の増分よりの算定値⇒2.871×10^{-13} m/s、排水量よりの算定値⇒1.219×10^{-13} m/s）

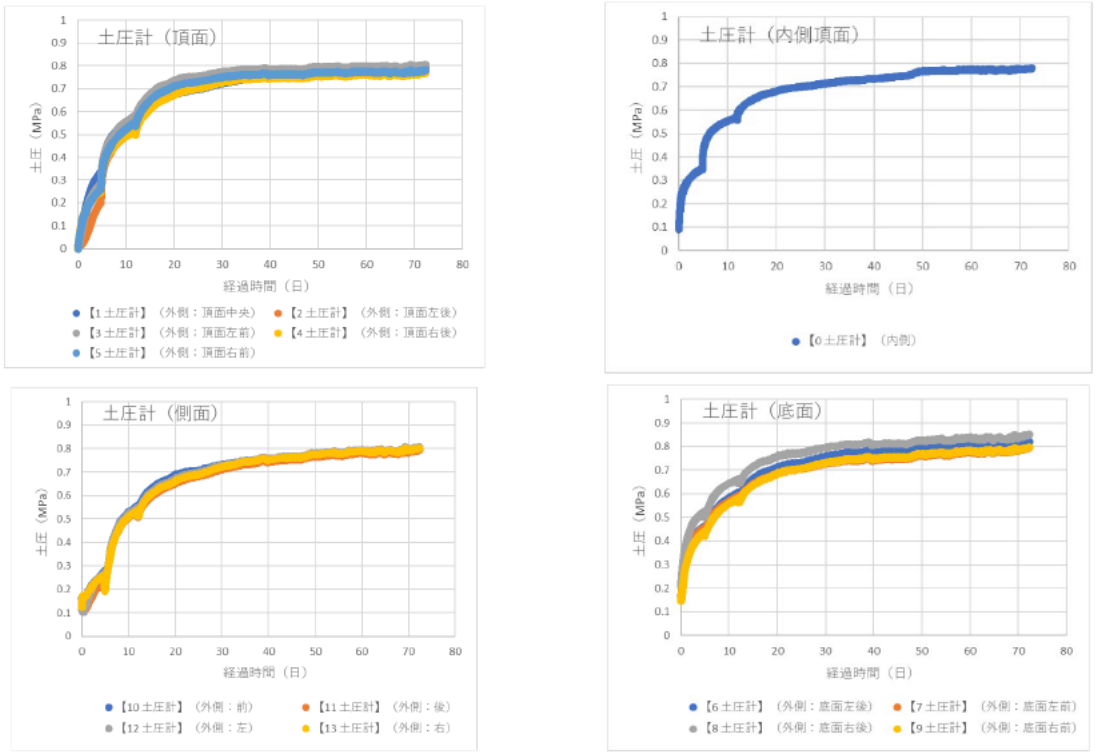


図 4-101　各計測システムでの計測状況

(2) ガス移行媒体の空隙構造と移行特性評価

1) 実施概要

TRU 処分場に施工する緩衝材の仕様について、包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構, 2021）では、Na 型ベントナイトのクニゲル V1 にケイ砂を混合したものを想定している。また、力学連成二相流解析コードである CODE_BRIGHT では、透気・透水性は変形（体積変化＝空隙率の変化）の影響を受けるとして、絶対浸透率の空隙率依存性を考慮している。本研究では、緩衝材の透水特性に関して、粒子径の異なる混合物に対して空隙率を中心とした統一的な式の整備を、数値解析と文献での試験結果に基づいた物理的な解釈からのアプローチにより目指す。このような検討を進めることで、緩衝材に限らず埋め戻し材等の透水性を予測する上で、任意の混合割合における透水性を予測可能となることも見込まれる。一般に粒子中の透水性は粒子のサイズや形状に大きく依存することが知られている。砂やシルトのような球形に近い形状を有する粒子中の透水性は次式で表される Kozeny-Carman 式（以下，KC 式）が広く用いられている。

$$k = \frac{\phi^3}{c\tau^2\left(1-\phi\right)^2\left(S_v\right)^2} \tag{4-10}$$

ここで k は透過率［m^2］ϕ は空隙率（有効空隙率）τ は屈曲度 S_v は比表面積［m^2/m^3］c は定数である。流体が水の場合は，透過率 k[m^2]に 10^7 を乗じることによって概算的に透水係数［m/s］の値が得られる。

一方、粘土中の透水性は卓越した流路の異方性、透水性に寄与しない微小な間隙（内間隙）の存在、さらに粒子表面の不動水層の存在などにより一層複雑なものとなることが知られている（Li et al., 2018）。粘土の透水性は経験的に次のようなべき乗則で与えられることが知られている(Schneider et al, 2011)。

$$k = k_0\left(\frac{\phi}{1-\phi}\right)^m \tag{4-11}$$

ここで k_0 および m は実験定数、ϕ は空隙率（有効空隙率）である。

図 4-102 は、さまざまな粒子を対象とした透水実験の結果を横軸に空隙率、縦軸に透過率としてまとめたものである。左上の赤色系のプロットは砂の透過率の実験結果を示している。これらの試料の透水性（透過率）は片対数グラフ上で空隙率に関して上に凸の形状で変化することがわかる。これは KC 式の空隙率依存性と同じ傾向であることを示している。右下の緑色系のプロットは、粘土の透水性の実験結果を示している。粘土の透過率は片対数軸上で空隙率に対して下に凸な形状の変化を示す。この変化の傾向はべき乗則と整合的である。中央部の青色系のプロットは砂粒子-粘土混合構造の透水性の実験結果を示している。

粒子の種類によって透水性に 10 桁以上の違いが見られるが、空隙率と透過率に着目すると低空隙率、高透過率の砂から中空隙率、中透過率の混合体を経て、高空隙率、低透過率の粘土へ連続的に推移しているように見える。さらに空隙率に対する透過率の変化の形状に着目すると、片対数グラフ上で透過率が上に凸の形状で変化する砂から直線的に変化する混合体を経て、下に凸の形状で変化する粘土へと連続的に推移すると推定される。以上より、関数形の全く異なる砂と粘土の透過率、さらには砂-粘土混合体の透過率が clay fraction（cf）を変数とすることで統一的に

表現できる可能性が示唆される。

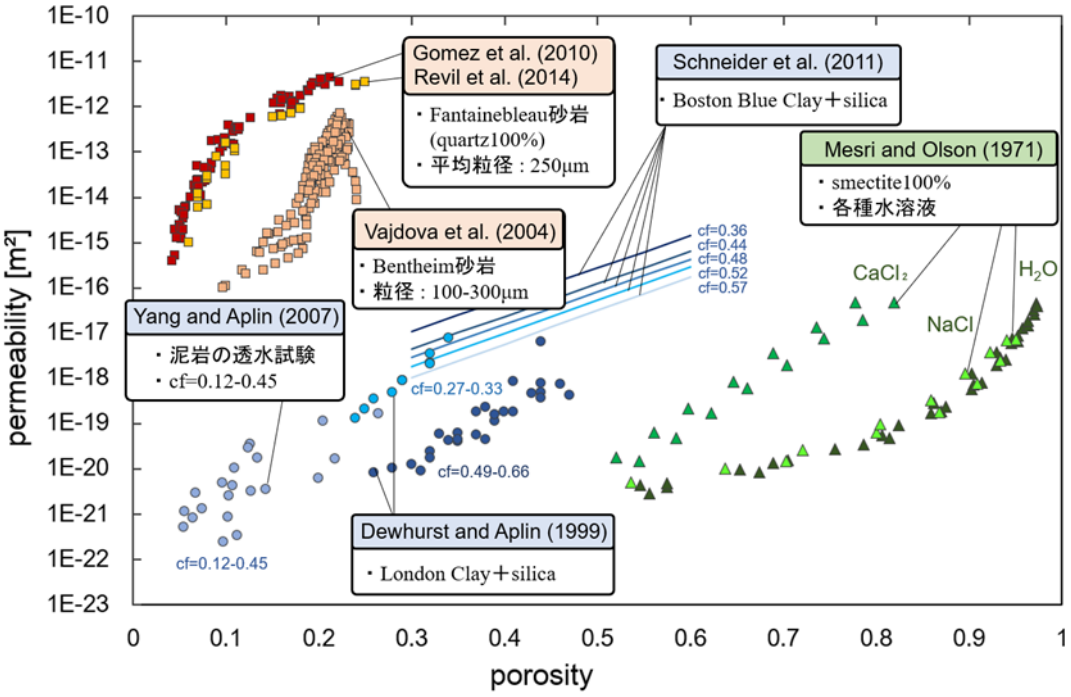


図 4-102　様々な粒子を対象とした透水実験の結果

本研究では砂、粘土、混合体をそれぞれ模した粒子構造を数値解析によって求め、その空隙特性を詳細に調べることで砂-混合体-粘土の透水性の推移の調査を行った。構造解析手法および作成した構造モデル（球充填構造、円板粒子構造、球-円板混合構造）より透水性を評価するために必要な空隙特性量（有効空隙率，屈曲度，比表面積）を算出する方法の概略は（原子力機構・原環センター, 2023）を参照。

2)　砂-粘土混合体の透過率に関する検討

①　砂-粘土混合体の解析結果

砂やシルトを含む粘土を模した球-円板粒子混合構造を Monte Carlo 解析により求めた。（原子力機構・原環センター, 2023）では NVT Monte Carlo 法を用いていたが、本検討では NPT Monte Carlo 法（神山, 1997）を用いた。NPT Monte Carlo 法と NVT Monte Carlo 法の差異として、NVT Monte Carlo 法では体積 V を固定していたが、NPT Monte Carlo 法では圧力 P を固定して体積 V を変動させることにより定圧条件での平衡構造を求めることができる。砂やシルトを含む粘土の透水実験のほとんどは空隙率を cf ではなく圧密によって変化させており、NVT Monte Carlo 法よりも NPT Monte Carlo 法の方がより実験事実に即した解析法であると言える。

砂–粘土混合体を模した球–円板粒子混合構造に対して、さまざまな空隙率、cf 条件を設定して構造解析を行い、得られた粒子構造中の空隙領域を抽出し、有効空隙率，比表面積および屈曲度を算出し、これら 3 つの空隙特性量を Kozeny-Carman 式（KC 式）に代入することで透過率を算出した。図 4-103 には cf=0.015～0.11 の条件における球–円板粒子混合構造の透過率の解析結果を先行研究の実験結果（Schneider et al, 2011）（Yang and Aplin, 2007）（Dewhurst and Aplin, 1999）と併せて示す。解析結果は砂（シルト）–粘土混合体の実験結果と近い透過率の範囲にプロットされており、空隙率が大きくなると透過率が大きくなる右肩上がりの傾向を示していることがわかる。

cf の小さい条件でも透過率は cf = 0 である砂の透過率と何オーダーも異なる。これは粘土粒子の扁平な形状から、わずかな割合で粘土を混合しても空隙を遮蔽するように粘土粒子が配置することで透水性を下げるためであると考察される。この理由によって、本解析条件の範囲においては cf の違いによって透過率の解析結果はわずかな変化しか示さなかった。砂-粘土混合体の実験結果においては cf の増加にともない図中の左上（低空隙率，高透過率）から右下（高空隙率，低透過率）に推移するが、本解析結果も同様に cf の増加にともなって右下がりの推移となる。

しかしながら今回の解析では混合粒子のサイズや cf の範囲が実験とは異なるため、ここでは定量的な考察はできないことに注意が必要である。NPT Monte Carlo 法は計算負荷が極めて大きいため、球形粒子のサイズが小さい低 cf 条件でしか解析ができなかった。解析負荷に関しては今後の課題である。NPT Monte Carlo 解析を用いた砂-粘土混合体の空隙特性量の評価方法と透過率の算出方法に関して、透過率の解析手法としての一定程度の可能性が得られた。

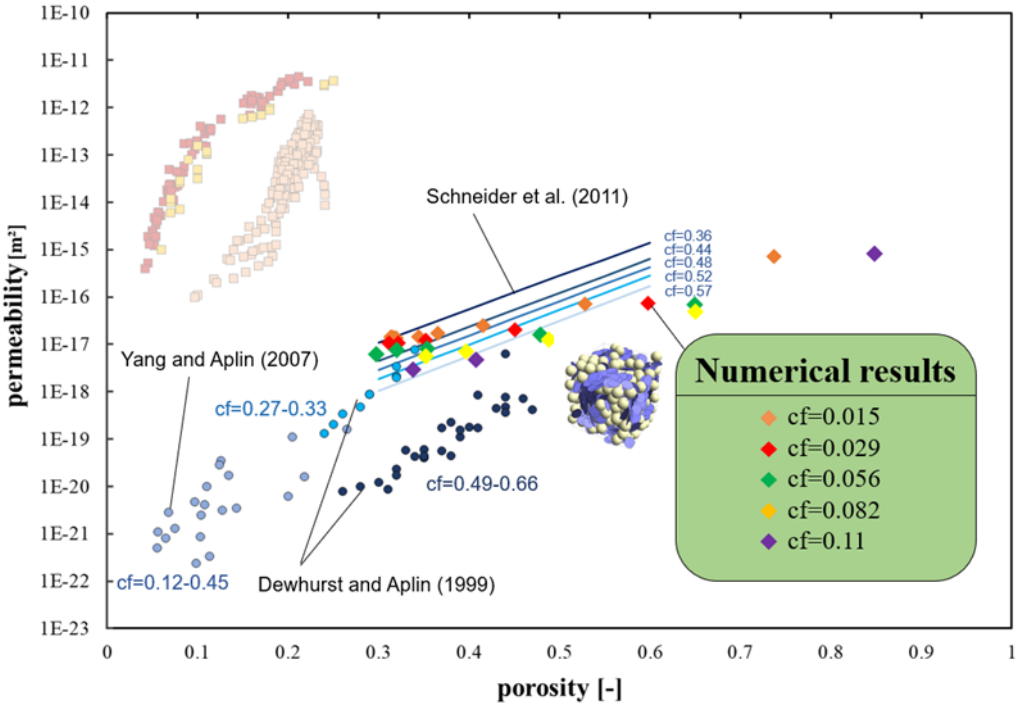


図 4-103　混合体の透過率の解析結果と実験結果との比較

② 粒子サイズに関する考察

今年度の解析では解析負荷の観点から円板粒子（粘土粒子）のサイズ）と同程度の球形粒子を含む混合構造の解析しかできなかった。これは緩衝材で見られるような砂粒子と粘土の混合体とはかなり異なる条件設定に相当する。以下では、解析結果と実験結果の比較から混合する球形粒子のサイズが透過率に与える影響について考察する。

Schneider らは、シルト粒子の混合が全体の透水性に及ぼす影響について考察している（Schneider et al., 2011）。彼らの結果からは小径粒子であるシルト粒子の存在によって粘土の構造が変化し「シルトブリッジ」と呼ばれるマクロポアを形成することによって透水性が大きくなることが示唆される。粘土中でシルト粒子が構造化することにより、周囲に大きな空隙が形成される。したがって、シルトのような小さいサイズの粒子が混合する場合、それほど空隙率は小さくならず透過率も比較的高い値を示すと考えられる。

一方、Dewhurst and Aplin（Dewhurst and Aplin, 1999）および Yang and Aplin（Yang and

Aplin, 2007）の研究では直径数 10μm～数 100μm のシリカ粒子（砂粒子）が多く混合されている試料で実験を行っている。このようなサイズの粒子が粘土中に混合されている場合、粘土粒子とのサイズ比が大きいため「シルトブリッジ」のような粘土粒子との干渉は生じず、透過率は粘土部分により律速すると考えられる。また全体の空隙率は粗大粒子の混合によってかなり低下すると考えられる。Dewhurst and Aplin および Yang and Aplin の実験結果は左下に相当する低空隙率，低透過率の領域にプロットされている。砂粒子のような比較的大きなサイズの粒子が混合している場合には混合体は低い透過率を示す傾向にある。

混合するシリカ粒子（非粘土粒子）が透過率に与える影響についての考察をまとめたものを図 4-104 に示す。混合体の透過率に関する実験結果はグラフの左下-中央付近を右肩上がりの直線的に変化するが、空隙率と透過率の範囲は粘土に混合している粒子サイズに大きく依存する。シルト粒子のような数μm 程度の粒子が混合している場合にはシルトブリッジの形成および粘土粒子の構造変化によりマクロポアが形成され、実験結果は中空隙率、高透過率領域を直線的に変化する。一方、数 100μm 程度の粒子が混合している場合には非粘土粒子が流路壁のような役割を果たしその隙間を粘土粒子が埋めているような構造になると推察される。この場合、流体の透過率は粘土部分によって律速され、実験結果は低空隙率、低透過率領域を直線的に変化すると考えられる。これは従来から提唱されていた有効粘土密度の考え方と整合的である。すなわち透水性自体は粘土の透過率によって決まり、粗大粒子の混入により空隙率だけが小さくなるという考え方と一致する。

以上の考察から、砂（シルト)-粘土混合体の透水性は混合する粒子のサイズに依存して変化すると考えられる。

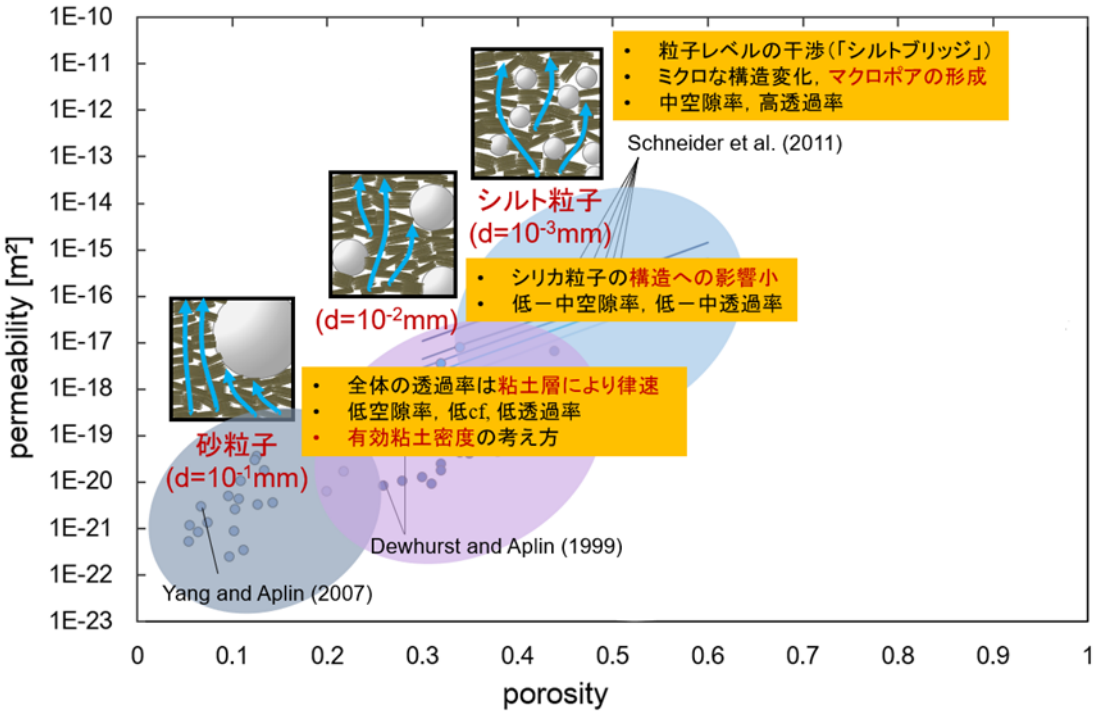


図 4-104　異なる粒子サイズを有する混合体の透水性の考察

3)　統一的な透水モデル構築に向けての検討

①　統一的な透水モデル構築に関する考察

砂を模した球充填構造、粘土を模した円板粒子構造の解析結果（原子力機構・原環センター, 2023)、および今年度解析を行った球-円板混合構造の解析結果の比較を行う。図 4-105 にそれぞれの粒子中の透過率の解析結果および先行研究による実験結果を示している。

各粒子の透過率の解析結果は構造解析で求めた粒子中の空隙部分を抽出し空隙特性量（有効空隙率，屈曲度，比表面積）を数値化し KC 式に代入して得られたものである。砂を模した球充填構造の解析結果は実験と同じ平均粒子径 d=250μm を仮定して求めたものであり、同条件の Revil ら（Revil et al., 2014）および Gomez ら（Gomez et al., 2010）の実験(赤色系のプロット)と定量的に一致することがわかる。砂（球充填構造）の透過率は、片対数グラフ上で空隙率に対して上に凸の形状で変化し低空隙率付近で透過率は急激な減少を示す。一方、粘土を模した円板粒子構造の解析結果は Mesri and Olson による水および Na 系水溶液の透水実験（Mesri and Olson, 1971）と定量的な一致が見られる。さらに、球-円板粒子混合体は cf や粒子サイズの条件は異なるものの透過率や空隙率の範囲、および変化の傾向が Schneider らの実験結果（Schneider et al., 2011）と一致した。

以上に述べたように、全ての粒子の透過率が同じ KC 式を用いて評価可能であったことは透水モデルの構築に関して重要な意味を持つ。すなわち、3 つの空隙特性量（有効空隙率、屈曲度、比表面積)を構成式として空隙率の関数としてモデル化することができれば、KC 式を基礎として全ての粒子の透過率を統一的に表すことが可能となる。

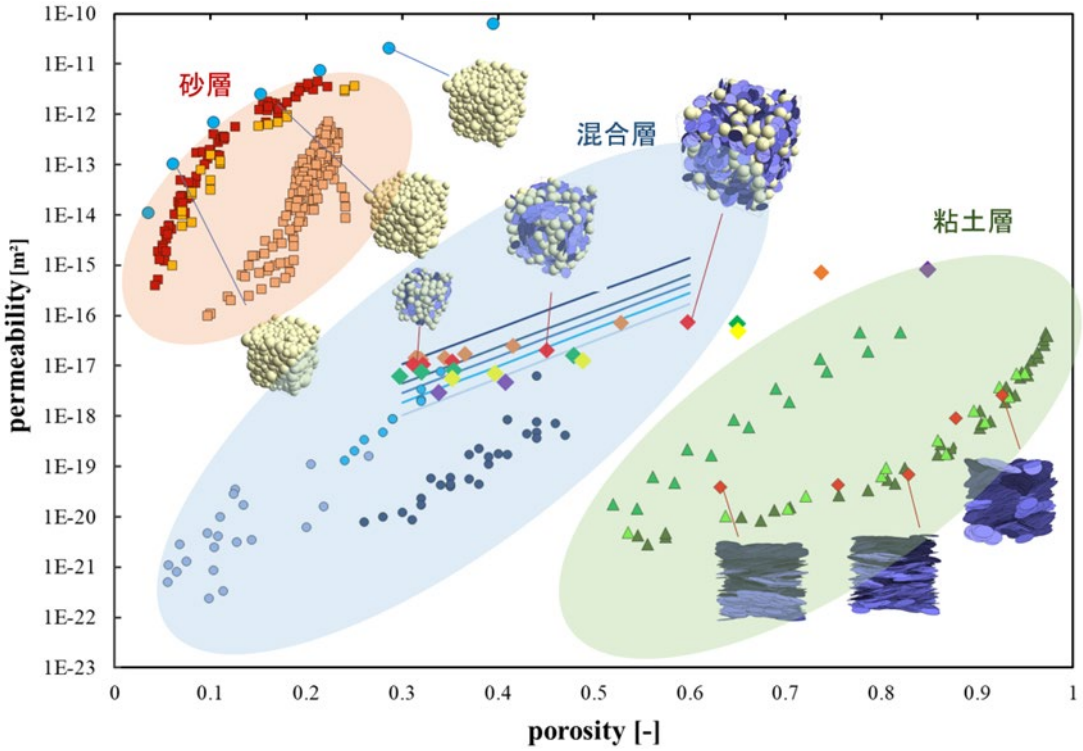


図 4-105　種々の粒子の透過率に関する解析結果と実験結果の比較

②　砂の空隙特性のモデル化

砂の構造解析結果から数値的に求めた粒子中の 3 つの空隙特性量（有効空隙率，屈曲度，比表面積）に関して、空隙率に対する変化について物理に基づいた構成式の確立を試みる。

有効空隙率は全空隙の中から孤立している空隙を除き物質移動に寄与する部分のみを考慮した体積の割合である。一般に、球形粒子の充填構造は粒子形状の単純さから孤立した空隙が生じにくいと考えられている。したがって多くの場合粒子の空隙率と有効空隙率は一致する。Fredrich ら(Fredrich et al., 1993)は、Fontainebleau 砂岩に対して共焦点レーザー顕微鏡法（CLSM）を用いて有効空隙率、比表面積などの空隙特性量の測定を行い、質量と体積から求めた空隙率と有効空隙率の関係が示されている。本解析によって得られた球充填構造中の有効空隙率および Fredrich らの砂岩中の有効空隙率の実験結果の比較を図 4-106 に示す。極めて小さな空隙率条件を除いて、幅広い密度条件で有効空隙率が空隙率と一致していることがわかる。以上の結果から、砂の有効空隙率に関するモデル式は次式のように定義できる。

$$\phi_e = \phi \tag{4-12}$$

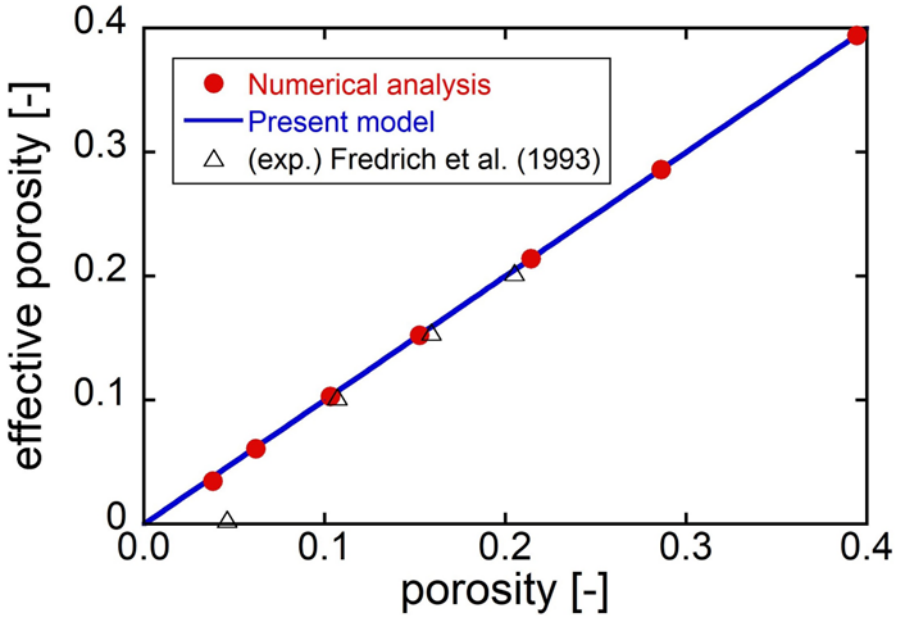


図 4-106　砂の有効空隙率（解析結果，実験結果およびモデル式の比較)

屈曲度は多孔質体中の空隙の曲がり具合を表す無次元量として知られており、空隙が直線状であれば 1、空隙の曲がり具合が大きければ 1 より大きい値を示す。球充填構造の屈曲度に関する先行研究は多数存在している。球充填構造中の屈曲度モデルには対数、べき乗則など種々の空隙率の関数を用いるものが存在し、例えば Zhang and Bishop（Zhang and Bishop, 1994）のモデルでは次式に従うと報告されている。

$$\tau = \phi^{-0.5} \tag{4-13}$$

本解析により得られた球充填構造の屈曲度と先行研究の結果との比較を図 4-107 に示す。解析結果の屈曲度は先行研究の結果と定量的に一致し、空隙率が 0.1 以上では 1 に近い値を示し、空隙率が 0.1 を下回ると急激に増加する傾向を示す。屈曲度モデルの比較結果は本解析結果および

先行研究の結果で概ね一致している。したがって上式の関数を採用し、球充填構造の屈曲度を表す構成式とした。

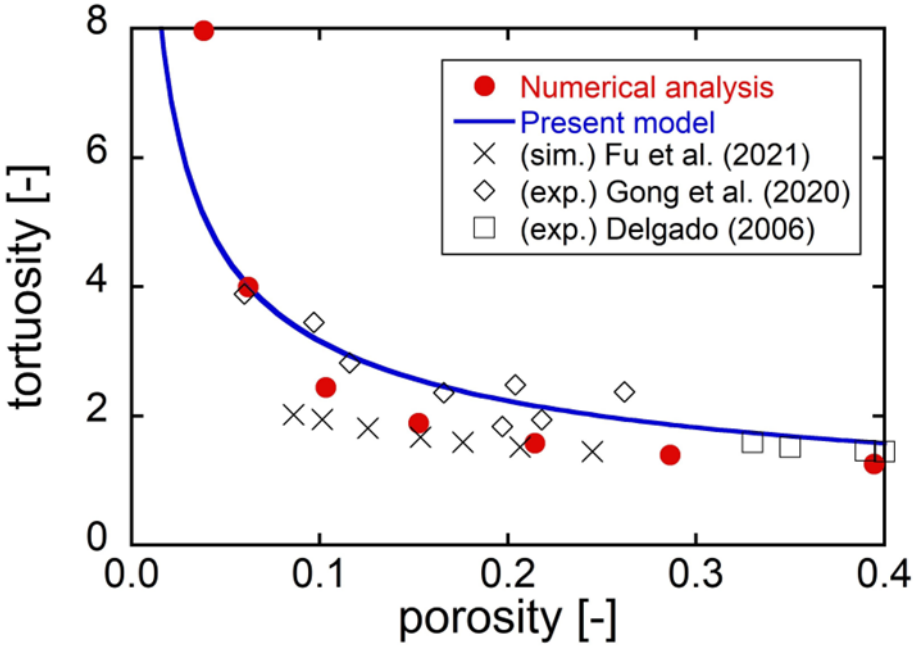


図 4-107　砂の屈曲度（解析結果，実験結果およびモデル式の比較)

砂岩の比表面積の測定方法には窒素ガス吸着法や画像解析、水銀圧入法などがあるが、以下には主に画像解析によって測定された砂岩の比表面積の先行研究について述べる。図 4-108 には本解析によって得られた球充填構造の比表面積と先行研究の実験結果との比較を示す。解析結果と実験結果は良い一致が確認でき、また球充填構造（砂岩）の比表面積は 10^3~10^4 m^2/m^3 のオーダーで推移し空隙率が 0.1 を下回ると急激に減少することがわかる。橙色の実線は次式で表される Rabbani and Jamshidi らのモデル（Rabbani and Jamshidi, 2014）を用いて求めた比表面積を示している。

$$S_v = \frac{4.23}{(1-\phi)d} \tag{4-14}$$

Rabbani and Jamshidi らのモデル式は高空隙率の範囲ではおおよそ一致するが、極めて小さい空隙率においては実験結果および解析結果と一致しないことがわかる。この理由として、空隙率が 0 の極限では本来、比表面積は 0 に漸近するが式で表される関数では空隙率が 0 で比表面積は一定値となり、物理的に矛盾した結果となることが挙げられる。

そこで本研究では新しい球充填構造の比表面積モデルの構築を試みた。幾何学的に球充填構造の空隙率と比表面積の関係を求めた。単分散の球形粒子の六方最密構造を仮定し、各粒子を等しい割合で膨張させることによって粒子のオーバーラップによる表面積と空隙率の減少分を算出し、空隙率と比表面積の関係を求めた。得られた球充填構造の比表面積は式(4-15)で表される。空隙率が 0 の極限で比表面積も 0 となるため物理的な矛盾を含まないモデルとなっている。青色の実線は算出した本式を用いて求めた比表面積を表している。

$$S_v = \frac{5\sqrt{\sqrt{2}\pi}}{d}\frac{\sqrt{\phi}}{1-\phi} \tag{4-15}$$

本研究で幾何学的に導出した比表面積モデルが実験結果および解析結果と良く一致することが確認できる。以上の結果より物理に基づいた球充填構造の比表面積モデルが構築できた。

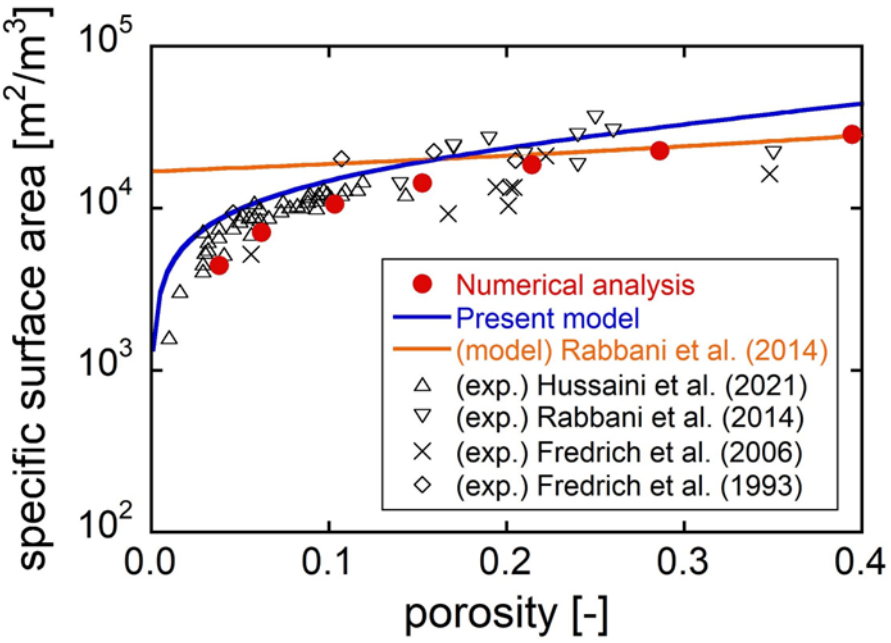


図 4-108　砂の比表面積（解析結果，実験結果およびモデル式の比較）

4.3.3.　　成果と今後の課題

(1)　水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化

今年度は、水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化に向けたデータの収集・分析および得られた知見を反映してのモックアップ試験の予測解析と、モックアップ試験体の製作および再冠水過程を実施した。

過年度までの 3 次元的な影響が確認できるガス移行モックアップ試験の結果より、破過の発生方向や排水量には異方性が確認され、材料特性のばらつきなどの三次元的なガス・水移行挙動への影響要因が存在すると推定されることから、それら影響の絞り込みとそれらの影響の程度を把握し、処分施設のより現実的な安全性の評価を目指し検討を進めた。

ガス移行モックアップ試験で示唆された、一次元要素試験から系が拡大されたことに伴う、材料のばらつきや施工方法等による排水量への影響は、実処分施設スケールにおいても存在すると考えられることから、緩衝材施工に伴うばらつきなどについて実処分施設スケールや同規模な既往の人工バリア施工試験データから分析・整理した。吹付け工法では乾燥密度のバラつきは比較的少ないが、転圧工法では締固め方向に対して上層ほど低くなる可能性を示唆していることが分かった。

分析結果の解析手法への反映を検討した。分析結果より転圧工法では締固め方向に対して上層ほど低くなることが推定され、モックアップ試験の供試体の最終締固め層である「頂部」におい

ても同様に低密度になる可能性および過年度のモックアップ試験結果から推定される水・ガスの移行が供試体の側部や作製継目方向に卓越する可能性を考慮し、解析モデルは各部に個別の物性条件を付与できるモデル構成とした。解析は力学連成二相流解析コードである CODE_BRIGHT で実施し、ガス移行に伴う緩衝材中の応力（ひずみ）変化によるミクロレベルでの亀裂の生成の影響を考慮した「Fracture aperture model（亀裂開口幅依存絶対浸透率モデル）」や CODE_BRIGHT の有するモデル領域内に不均質性を考慮できる機能（地球統計学における空間的自己相関を用いて空間的な不均質性）を活用した。解析モデルの各部にこれら機能を個別に反映したいくつかのケースを設定し解析結果を比較することで、水・ガス移行特性や供試体からの排水量への諸現象の影響の程度や解析手法の適用性を確認した。

解析結果については、計算が不安定となり予測解析が困難な結果となった。不安定となった要因として、Fa モデルおよび均質モデルは解析モデルの全要素への適用を前提としたものであるため、特定領域要素のみへの適用性が低かったことによると考えられる。計算の収束性を高めることも重要であるが、緩衝材中での発生ガスによる押し出しに伴う汚染水移行の加速という課題に対しては、ガス移行モックアップ試験での供試体全体からの総排水量とガスの総注入量に着目することも重要である。飽和した緩衝材中で、ガス圧が低い状態であれば、注入したガスは水中に溶解し、液相の拡散による移行が支配的な移行形態となると考えられる。ガスが水中に溶解している場合は押し出しによる排水の供試体の圧縮による排水には寄与しない。供試体からの排水現象に寄与するガス圧やガスの注入量についてガス移行モックアップ試験を通して実証データや考察を積むといったアプローチで、発生ガスによる排水量への影響の現実的な評価を目指すことも処分場の安全性の説明への寄与として有用と考える。

過年度のモックアップ試験および再破過試験により、要素試験に比べて低圧で破過すること、理想的な条件においてではあるが破過後の自己修復性を確認した。また、これまでのガス移行にともなう核種移行解析の知見から破過に伴う緩衝材の自己修復性の喪失が核種移行への影響に対して大きいことがわかっている。以上の知見から、ガス発生による著しい蓄圧を伴わない場合には破過に伴う緩衝材の大きな変形・破壊には至らず、自己修復性への影響が小さいことが見込まれ、その結果、核種移行への影響も大きくならないことが推定される。そこで、処分場での安全性を説明するためにもモックアップ試験によって実現象に近いガス移行特性と自己修復性の知見を積み上げ、以上の推定を確認することは重要である。

今年度はガス移行モックアップ試験体を製作し再冠水過程を実施し飽和の進展を確認した。供試体は、過年度の小規模モックアップ試験装置と同等な装置を用いて油圧ジャッキによる静的圧縮により作製した。続いて、供試体を飽和させることを目的とした再冠水過程を実施し、供試体の吸水膨潤挙動の観測とそれに伴う注・排水量や膨潤圧、透水係数といったデータの取得および考察を実施した。供試体への注水挙動及び供試体からの排水挙動の順調な推移を確認し、供試体各面の土圧計測定値もほぼ同一の増加を示していることから供試体の吸水に伴う膨潤圧の発達および各部とも概ね均質に飽和への到達を観察した。

次年度以降の課題として､緩衝材の自己修復性の確認に向けモックアップ再破過試験を実施し、緩衝材の自己修復性について知見を積み上げる必要がある。過年度までの再破過試験では理想的な状況における自己修復性の発揮しか確認できていないことから、再破過試験の実施にあたっては実処分場での安全性の評価に寄与できる試験結果が得られるように試験の実施条件等について検討をする必要がある。

(2)　ガス移行媒体の空隙構造と移行特性評価

TRU 処分場に施工する緩衝材の仕様について、包括的技術報告書（原子力発電環境整備機構,

2021）では、Na 型ベントナイトのクニゲル V1 にケイ砂を混合したものを想定している。本研究では、緩衝材の透水特性に関して、粒子径の異なる混合物に対して空隙率を中心とした統一的な式の整備目指す。本検討では、砂、粘土、混合体をそれぞれ模した粒子構造を数値解析によって求めその空隙特性を詳細に調べることで砂-混合体-粘土の透水性の推移について検討した。具体的には、KC 式を基礎とした全ての粒子の統一的な透過率モデルの構築や砂-粘土粒子混合体における混合する粒子のサイズによる透水性への影響の評価を目的とする。

砂やシルトを含む粘土を模した球-円板粒子混合構造を NPT Monte Carlo 解析により再評価を実施した。砂-粘土混合体の実験結果においては cf の増加にともない低空隙率，高透過率領域から高空隙率，低透過率領域に推移するが、今年度の解析結果も同様に cf の増加にともなって右下がりの推移となった。定性的な傾向の一致が確認できたことから、砂-粘土混合体の空隙特性量の評価方法と透過率の算出方法に関して、NPT Monte Carlo 解析の解析手法としての適用性が確認できた。また、砂の構造解析結果から数値的に求めた 3 つの空隙特性量（有効空隙率，屈曲度，比表面積）に関して、空隙率をパラメータとし、モデル化した。

次年度以降の課題としては、球-円板粒子混合構造解析における解析条件の見直し、粘土の空隙特性量のモデル化が挙げられる。NPT Monte Carlo 法は計算負荷が極めて大きいため球形粒子のサイズが小さい低 cf 条件でしか解析ができず、今年度の解析は混合粒子のサイズや cf の範囲が実際の実験とは異なる。定量的な議論のためには、実際の実験サイズに則した系での解析が必要である。また、全ての粒子の統一的な透過率モデルの構築に向けて、粘土の空隙特性量（有効空隙率，屈曲度，比表面積)についても空隙率をパラメータとしてモデル化を進める。

参考文献

（4.1）

赤山類, 松山加苗, 湯原勝, ジオポリマー固化体の水素発生挙動に関する研究, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, 3A13, 2021.

赤山類, 松山加苗, 湯原勝, 豊原尚実, ジオポリマーの材料物性に関わる水素発生挙動の研究, 日本原子力学会 2023 年秋の大会, 2E08, 2023.

Chupin, F., et al, Water content and porosity effect on hydrogen radiolytic yields of geopolymers, Journal of Nuclear Materials, 494, 138-146, 2017.

土木学会, 超高強度繊維補強コンクリートの設計･施工指針(案), コンクリートライブラリー113, 2004.9., 2004.

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

原子力環境整備促進・資金管理センター, 低レベル放射性廃棄物処分用廃棄体製作技術について（各種固体状廃棄物）, 1998.

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 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・処分技術高度化開発　報告書 令和 5 年３月, 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　令和 5 年３月, 2023b.

ジオポリマー製造装置、および、ジオポリマー製造方法, 特許第 6926017 号, 2021.08.06.

廃棄体の形成方法および廃棄体の形成システム, 特開 2023-84411, 2023.06.19.

放射性廃棄物固化方法、および、放射性廃棄物固化システム, 特開 2022-116814, 2022.08.10.

JIS R5201:2015（セメントの物理試験方法）のフロー試験

神戸製鋼所, ポゾリスソリューションズ, 低炭素型コンクリート/モルタル「ジオポリマー」の共同開発について, 2021 年 11 月 1 日　プレスリリース, 2021.

Lambettin, D. et al., Influence of gamma ray irradiation on metakaorin based sodium geopolymer, Journal of Nuclear Materials, 443, 311-315, 2013.

松山加苗, 岡部寛史, 金子昌章, 汚染水処理で発生する二次廃棄物の固化技術に関する研究, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2I05, 2016.

Matsuyama, K., Okabe, H., Shimoda, C., Miyamoto, S., Kaneko, M., Saso, M., Toyohara, M., Geopolymer Solidification of Intermediate Level Waste, Waste Management 2017 Confeerence, 17078, 2017.

室屋裕佐, 水と水溶液の放射線化学, *RADIOISOTOPES*, 66, 425–435, 2017.

日本コンクリート工学会, “古くて新しい建設材料「ジオポリマー」”の可能性と課題（TC-155A：建設分野へのジオポリマー技術の適用に関する研究委員会）, 日本コンクリート工学会. https://www.jci-net.or.jp/j/concrete/technology/201706_article_1.html

日本コンクリート工学会, 建設分野へのジオポリマー技術の適用に関する研究委員会 報告書 2017 年 9 月, 日本コンクリート工学会, 2017.

日本原燃株式会社, 濃縮・埋設事業所廃棄物埋設施設保安規定変更認可申請書の一部補正につい

て（2021 年 8 月 27 日付）, 2021.
https://www.nra.go.jp/data/000363220.pdf
吉元昭二, 永縄勇人, フライアッシュを用いた不焼成材料の開発, あいち産業科学技術総合センター研究報告, あいち産業科学技術総合センター企画連携部企画室 編, 6: 30-33, 2017.
Yuhara, M., Fukayama, K., Matsuyama, K., Yamashita, Y., Shimoda, C., Studies on Workability of Geopolymer Soldification, Waste Management 2018 Confeerence, 18171, 2018.
湯原勝, 松山加苗, 山下雄生, 高線量廃棄物の固化に関する研究　ジオポリマーの混練粘度制御に関する検討, 日本原子力学会 2019 年春の年会, 1C07, 2019.
渡辺力, 放射線と原子・分子（分子科学講座 12 巻）, 16-71, 共立出版, 1966.
酒本琴音, 加藤昌治, 石井祐輔, 胡桃澤清文, 奈良禎太, 鋼繊維入り高強度項緻密コンクリートの透水性評価, 材料, vol.71, No.3, pp.228-234, 2022.

（4.2）
秋山吉弘,寺田賢二,山田淳夫：地下空洞型処分施設施工技術の確証試験の概要, 2016
Dewhurst, D. N., Aplin, A. C. and Sarda, J., Influence of Clay Fraction on Pore-scale Properties and Hydraulic Conductivity of Experimentally Compacted Mudstones, *J. Geophy. Res.*, 104, B12, 1999.
Delgado, J. M. P. Q., A Simple Experimental Technique to Measure Tortuosity in Packed Beds, *Can. J. of Chem. Eng.*, 84, 651, 2006.
Fu, J., Thomas, H. R. and Li, G., Tortuosity of Porous Media: Image Analysis and Physical Simulation, *Earth Sci. Rev.*, 212, 103439, 2021.
Fredrich, J. T., Greaves, K. H. and Martin, J. W., Pore Geometry and Transport Properties of Fontainebleau Sandstone, Int. J. Rock Mech. Sci. Geomech. Abstr., 30, 691, 1993.
Fredrich, J. T., DiGiovanni, A. A. and Noble, D. R., Predicting Microscopic Transport Properties Using Microscopic Image Data, *J. Geophys. Res.*, 111, B03201, 2006.
原子力発電環境整備機構（NUMO），包括的技術報告書：わが国における安全な地層処分の実現―適切なサイト選定に向けたセーフティケースの構築―, 2021.
Gomez, C. T., Dvorkin, J. and Vanorio, T., Laboratory Measurements of Porosity, Permeability, Resistivity, and Velocity on Fontainebleau Sandstones, *Geophysics*, 75, 6, 2010.
Gong, L., Nie, L. and Xu, Y., Geometrical and Topological Analysis of Pore Space in Sandstones Based on X-ray Computed Tomography, *Energies*, 13, 3774, 2020.
I.P. Damians, S. Olivella, A. Gens, Modelling gas flow in clay materials incorporating matelial heterogeneity and embedded fractures, 2020.
神山新一, 佐藤 明, モンテカルロ・シミュレーション, 朝倉書店, 1997.
日本原子力研究開発機構・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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 資源エネルギー庁, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 資源エネルギー庁, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 資源エネ

ルギー庁, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 資源エネルギー庁, 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 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発, 資源エネルギー庁, 2023.
河野伊一郎・西垣誠 : 室内透水試験に関する 2, 3 の考察, 土質工学会論文報告集, Vol.22, No.4, pp.181-190, 1982.
Li, B., Wong, R. C. K. and Heidari, S., A Modified Kozeny-Carman Model for Estimating Anisotropic Permeability of Soft Mudrocks, *Mar. Pet. Geol.*, 98, 356, 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, 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 地層処分施設閉鎖技術確証試験 報告書, 2023.
Rabbani, A. and Jamshidi, S., Specific Surface and Porosity Relationship for Sandstones for Prediction of Permeability, *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, 71, 25, 2014.
Revil, A., Kessouri, P. and Torres-Verdin, C., Electrical Conductivity, Induced Polarization, and Permeability of the Fontainebleau Sandstone, *Geophysics*, 79, 5, 2014.
Schneider, J., Flemings, P. B., Day-Stirrat, R. J. and Germaine, J. T., Insights into Porescale Controls on Mudstone Permeability through Resedimentation Experiments, *Geology*, 39, 1011 , 2011.
S. Olivella, A. Gens, J. Carrera and E.E. Alonso : Nuumerical formulation for a simulator (CODE_BRIGHT) for the coupled analysis of saline media, Engineering Computations, Vol.13 No.7, 1996, pp.87-112, 1995.
高阪宏行 : クリンキングとその地理的応用, 日本大学文理学部自然科学研究紀要, No.34, pp.27-35, 1999.
Yang, Y. and Aplin, A. C., Permeability and Petrophysical Properties of 30 Natural Mudstones, *J. Geophy. Res.*, 112, B03206, 2007.
Zhang, T. C. and Bishop, P. L., Evaluation of Tortuosity Factors and Effective Difusivities in Biofilms, *Wat. Res.*, 28, 2279, 1994

5.　人工バリアの閉じ込め機能の高度化

5.1.　目的と 5 か年の計画

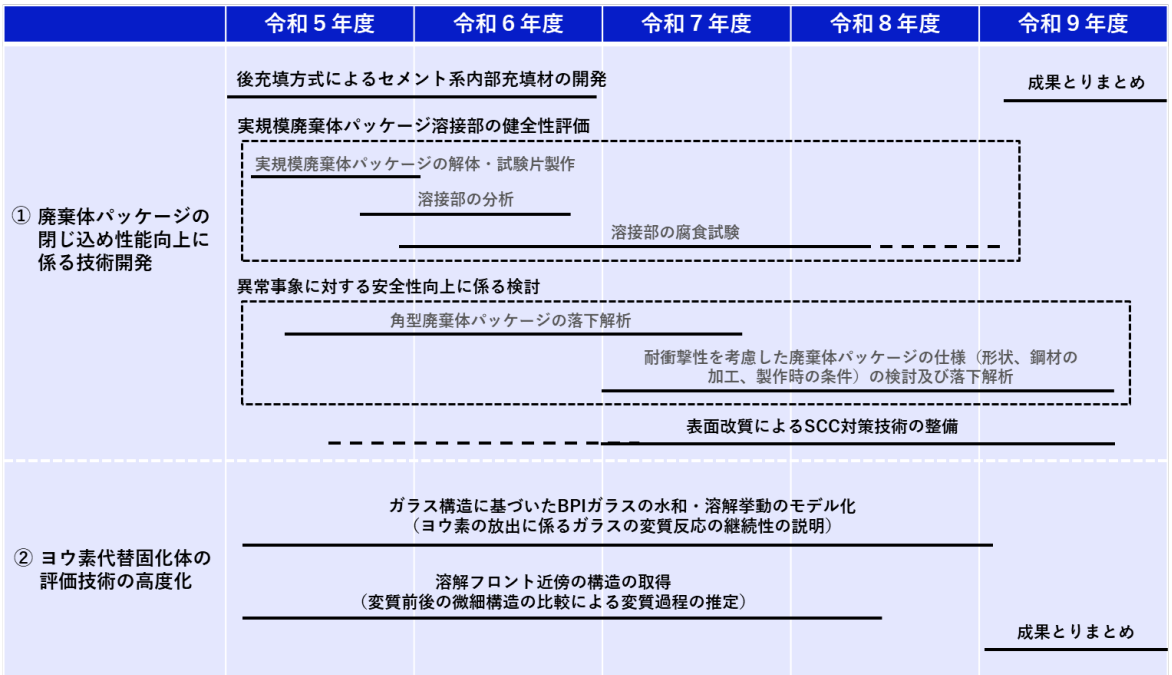
地層処分の対象となる特定放射性廃棄物の処分に向けて、NUMO がセーフティーケースとして公表した包括的技術報告書において、TRU 等廃棄物の処分後の安全評価解析の結果、ヨウ素 129 を始めとする長半減期の陰イオン核種が線量を支配することに加え、パッケージに核種の閉じ込め性を期待しない場合には、それらの生物圏への影響が数 10 年で現れることが示された（NUMO, 2021）。

その対策として、同報告書では 300 年間の閉じ込め性を持たせた廃棄体パッケージ（パッケージ B）について、その仕様例を同付属書 4-21 にて示している。本高度化では、この仕様例に基づいて、熱的制限を有するアスファルト固化体の収納にも適用できる鋼製角形容器の製作の実現性を示す事を目的に実施された、廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価（原環センター, 2023）において製作された廃棄体容器を対象に、健全性を担保するために必要な、異常事象に対する安全性、溶接部の健全性、及び応力腐食割れ対策に関する検討を実施する。

また、第 2 次 TRU レポート（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）で示されたヨウ素 129 の影響低減のための代替固化技術のうち、その長期的なヨウ素放出挙動の説明性の向上が必要な BPI ガラス固化技術を対象として、ガラスからのヨウ素の長期的な放出挙動の継続性と、その理論的な説明を試みる。

令和 5 年度から令和 9 年度までの 5 か年の実施計画を**表 5-1** に示す。

表 5-1　5 か年の実施計画



5.2. 廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発

5.2.1. はじめに

TRU 等廃棄物処分場において、人工バリアの構成要素である廃棄体パッケージは、鋼製容器に複数の廃棄体（ドラム缶やキャニスタ）をセメント系材料等の充填材とともにパッケージ化したのち、地下の処分坑道に搬送・定置される。

処分場の人工バリアの設計にあたっては、まず設計因子である閉鎖前の安全性、工学的成立性、閉鎖後長期の安全性についてそれぞれ要求事項（安全機能）が期待されており、廃棄体パッケージに対しては、それらを満たすための設計要件及び評価項目が設定されている（図 5-1）。

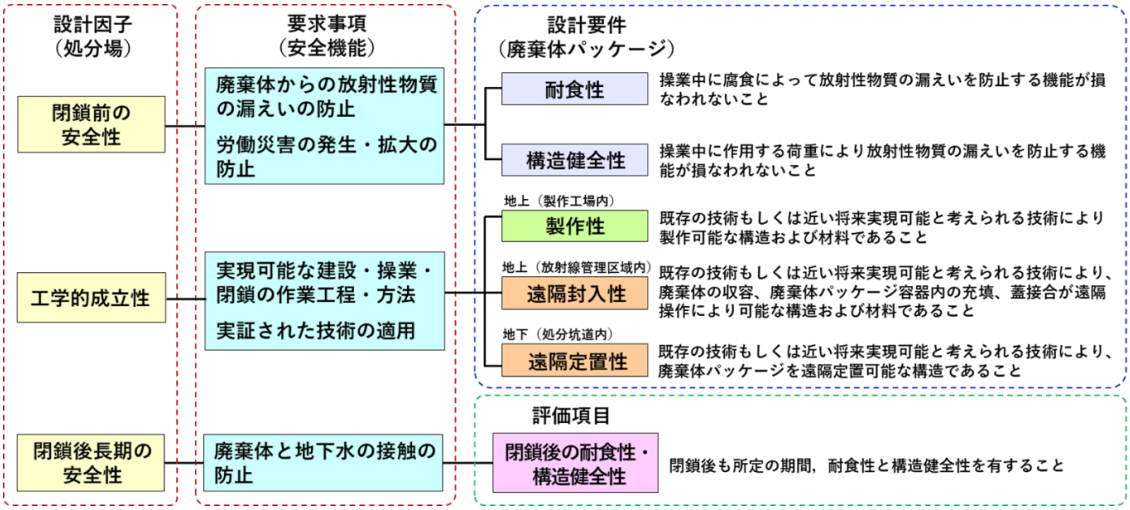


図 5-1 廃棄体パッケージに要求される設計要件及び評価項目（NUMO 包括的技術報告書「第 4 章 処分場の設計と工学技術」を要約）

そのため、平成 30 年度から令和 4 年度にかけて実施した先行事業では、セメント系パッケージ内充填材から水分の放射線分解により発生する水素ガスを抑制する技術や、廃棄体への熱影響が低減可能な遠隔蓋接合技術の開発に取り組み、耐食性や構造健全性といった設計要件を考慮した実規模の廃棄体パッケージを製作することで、工学的成立性を実証し、同時に、今後に向けた課題や反映すべき事項等を抽出した。

そこで、本事業における「廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発」では、それらの課題に加え、先行事業では着手できなかった検討事項や、新たに着目した技術開発に取り組むことで、閉じ込め性能の高度化を図り、地層処分の安全性に対する信頼性向上を目指す。

表 5-2 に検討項目を示す。

表 5-2 検討項目と対応する設計因子

	検討項目	対応する設計因子
①	後充填方式によるセメント系パッケージ内充填材の開発	工学的成立性
②	実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価	閉鎖後長期の安全性
③	異常事象に対する安全性向上に係る検討	閉鎖前の安全性
④	表面改質による SCC 対策技術の整備	工学的成立性、閉鎖後長期の安全性

5.2.2. 後充填方式によるセメント系パッケージ内充填材の開発

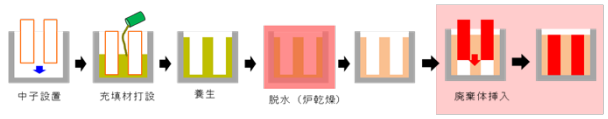
先行事業で実施した「廃棄体パッケージの閉じ込め性能に係る試験と評価」では、NUMO 包括的技術報告書に示される廃棄体パッケージ B の構成要素に基づき、容器は炭素鋼製の溶接構造とし、パッケージ内充填材はセメント系材料を使用することを前提条件として検討を進めてきた。

廃棄体パッケージ内充填材にセメント系材料を用いた場合、セメント系材料に含まれる間隙水などの放射線分解によって水素ガスが発生する。そのため、長期間密封された容器内においては、水素ガスによる内圧上昇が原因で容器が破損することが懸念されることから、セメント系材料に対しては、適切なガス発生の抑制対策を講じることが重要な課題であった。

そこで、先行事業では、**図 5-2** に示す「先打設」、「後打設」、「プレキャスト」の 3 つのセメント系材料を用いたパッケージ内充填材の施工方式のうち、製品単体として乾燥処理による水素ガス発生量の抑制が可能なプレキャスト方式を採用し、パッケージ内充填材としてのセメント系材料の仕様、品質管理及び施工管理方法について取りまとめた。

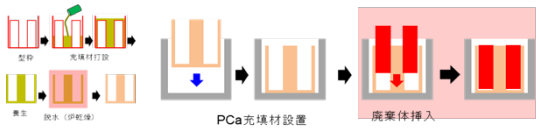
本検討では、残る 2 つの工法のうち、後充填方式でのパッケージ内充填材の実現性を確認する。そうすることで、これまでの検討で実証したプレキャスト方式やその応用が可能な先充填方式と合わせて、様々な製作工程に柔軟に対応することが可能となる。

(a) 先打設方式 ： 容器内部に予め充填材を打設し、廃棄体を挿入



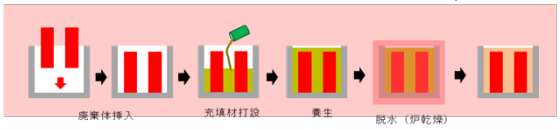
	製作時の技術的な観点	長期的な観点
利点	・打設後に乾燥工程可能 ・打設作業は非放射線環境	・容器と充填材が一体化 ・核種の収着が期待できる ・廃棄体の再取出しが容易
懸念	・炉乾燥の大型化、品質管理 ・隙間の取合（廃棄体-充填材）	・廃棄体の固縛が必要 ・隙間残存

(b) プレキャスト方式 ： 製作済みの充填材を容器に設置し、廃棄体を挿入



	製作時の技術的な観点	長期的な観点
利点	・乾燥作業時の他部材への影響なし ・充填材挿入作業は非放射線環境 ・充填材の乾燥、品質管理が容易	・核種の収着が期待できる ・廃棄体の再取出しが容易
懸念	・隙間の取合（容器-充填体、充填材-廃棄体）	・廃棄体、充填材の固縛が必要 ・隙間残存

(c) 後打設方式 ： 容器内部に廃棄体を設置し、充填材を打設



	製作時の技術的な観点	長期的な観点
利点	・廃棄体周囲に隙間が生じない。	・容器と充填材と廃棄体が一体化 ・核種の収着が期待できる
懸念	・全工程が放射線環境下 ・打設時の廃棄体の浮上り防止 ・廃棄体とともに乾燥作業	・充填部に残存する水分の影響 ・廃棄体の再取出しが困難

図 5-2　セメント系材料による廃棄体パッケージ内充填材の製作方法

(1)　後充填方式に用いるセメント系材料

後充填方式のパッケージ内充填材に用いるセメント系材料には、高強度高緻密コンクリートを使用する。

高強度高緻密コンクリートは、「地層処分技術調査等　TRU 廃棄物関連処分技術調査　廃棄体開発」において、廃棄体パッケージのオプションの候補材料として適用性が検討されたコンクリート材料でもあり、物理的に空隙を極限まで抑えた配合設計により、150 MPa 以上の圧縮強度を発現することが可能な材料である。

配合は、**表 5-3** に示すように、強度繊維補強コンクリートの設計・施工指針（案）（土木学会, 2004）で規定される標準配合粉体と、専用の高性能減水剤、練混ぜ水で構成される。

表 5-3　高強度高緻密コンクリートの配合例

W/C (mass%)	単位量（kg/m³）					
	水	標準配合粉体				高性能減水剤 (SP)
		セメント	シリカフューム	中間粒子	骨材	
18～24	180	744～1014	158～496	225～541	631～947	24

(2)　後充填方式による施工を考慮した要素試験の実施

高強度高緻密コンクリートをパッケージ内充填材として使用するためには、充填性能として容器内の隅々まで充填できるような流動性が求められる。しかしながら、現時点で後充填方式における充填性を評価する明確な基準は存在しないため、高強度高緻密コンクリートの充填性について、新たに品質管理手法を確立する必要がある。

そこで、既存の試験規格による評価手法を参考に、評価手法を検討した。

1)　高強度高緻密コンクリートによるフロー試験

通常の高流動コンクリートの充填性（流動性）に関する品質管理手法では、**図 5-3** のようなフロー試験や漏斗試験があるが、特にフロー試験による管理が一般的である。

そこで、高強度高緻密コンクリートによるモルタルフロー（JIS R 5201 90 秒静置フロー）試験を実施した。

図 5-3　フロー試験や漏斗試験のイメージ

2)　試験方法

試験に使用する材料を**表 5-4** に示す。

練混ぜ方法については、100Ｌのパン型強制練りミキサを使用し、練混ぜ手順は、標準配合粉体をミキサに投入して 30 秒撹拌、水と混和剤を投入して 10 分練り混ぜとした。

表 5-4　使用材料

種類	仕様
水	上水道水
標準配合粉体	太平洋セメント社製
混和剤（高性能減水剤）	専用減水剤、太平洋セメント社製

高強度高緻密コンクリートの配合選定は、所定の 90 秒フローが得られるように高性能減水剤

添加量（SP）を調整した。

フロー試験では、運搬工程における流動性の経時変化を検討するために、静置した状態での可使時間を確認した。また、基礎物性の取得を目的に、所定の材齢まで温度 20 °C 封緘養生した供試体を用いて圧縮強度試験を実施した。

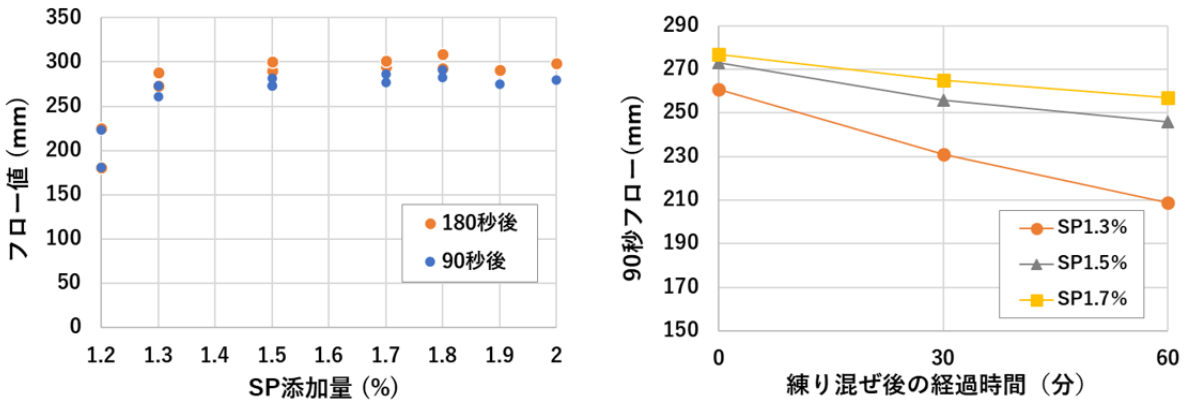
3)　試験結果

フレッシュ性状の測定結果を**図 5-4** に示す。

90 秒フローは、SP 量 1.8%（結合材に対する質量割合）までは SP 量増加に伴い増大するが、SP 量をそれ以上増加させると低下する傾向を示した。

また、90 秒フローは、時間の経過に伴い低下するものの、本試験の範囲では、練り混ぜ直後の 90 秒フローが 260 mm 以上であれば、60 分経過後においても 200 mm 以上を保持しており、充填高さ 340 mm 以上と基準値を十分に満足した。

これらの結果から、SP 量 1.3 %～1.8 %、90 秒フロー 260 mm ～ 280 mm の範囲であれば、材料分離等の変状もなく優れた自己充填性が期待できることを確認した。



(a) フロー値と測定時間　　(b) 90 秒フローと練り混ぜ後の経過時間

図 5-4　フレッシュ性状の測定結果

SP 添加量による硬化性状については、**表 5-5** に示すように、材齢 4 週までの強度発現性に SP 添加量による差は認められなかった。

表 5-5　SP 添加量による圧縮強度の測定結果

SP 添加量	圧縮強度（MPa）	
	材齢 1 週	材齢 4 週
1.3%	133	175
1.5%	133	179
1.7%	137	177

(3)　模擬試験体による充填性試験

1)　試験方法

使用材料は、**表 5-4** と同様とし、配合は、**表 5-6** に示すように、90 秒フローで 2 条件を設定

した。練混ぜ方法は、100Lのパン型強制練りミキサを使用し、練混ぜ手順は、標準配合粉体をミキサに投入して30秒撹拌、水と混和剤を投入して10分練り混ぜとした。

表 5-6　模擬試験体による充填性試験における廃棄体パッケージ内充填材の配合

設定配合	目標とする90秒フロー(mm)	単位量（kg/m³）			結合材に対する高性能減水剤の質量割合（%）
		水	標準配合粉体	高性能減水剤	
基本配合より流動性が低い配合※	260±5	204	2,273	17.4	1.28
基本配合	270±5	204	2,273	19.0	1.40

※：充填性を有することを確認できている範囲で流動性が最も低い配合

充填性試験に用いる模擬試験体は、**図 5-5** に示すように、幅 700 mm×高さ 600 mm×奥行 122 mm の形状で、幅の中央に奥行側の両サイドに奥行 48 mm または 36 mm×長さ 100 mm×高さ 600 mm の部材を 2 個を設けた。なお、内部の充填状況が視認できるよう、一方の面をアクリル板にしている。

充填方法は、模擬試験体の片側から自由落下により充填し、中央の部材間の幅 20 mm または 44 mm、長さ 100 mm の流動障害を流れ出て反対側を充填する。なお、後充填方式による施工については、実際の施工環境などの条件及び運搬時間や打設までに要する時間が不明であることに加え、廃棄体パッケージ内充填材の練混ぜ後に、直ちに打設することは現実的に難しいと考えられる。そこで、練混ぜ後 30 分間静置したのち模擬試験体に充填することとした。なお、練り返しの有無による影響を確認するため、練り返し有りと無しの 2 水準を設定した。

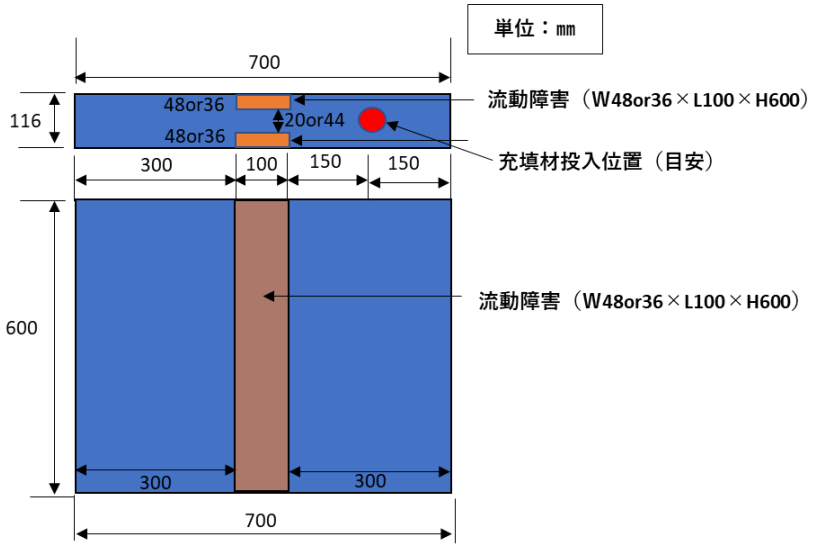


図 5-5　模擬試験体の概要図

表 5-7　模擬試験体による充填性試験水準

試験ケース	設定配合	流動性障害（通過幅）		試料投入のタイミング	試料投入前練返し有無
		20 mm	44 mm		
B1	試験練り実施配合で流動性最低配合※1	○	－	練混ぜ後30 分静置後※2	有
B2	基本配合	○	－		有
B3	基本配合	－	○		有
B4	基本配合	○	－		無

※1：充填性を有することを確認できている範囲で流動性が最も低い配合

※2：各水準、模擬試験体（型枠）への充填開始前に、以下のフレッシュ性状を確認

- モルタルフロー（90 秒後、180 秒後）
- モルタル V 漏斗
- 空気量
- 試料温度

充填性試験の実施状況を**図 5-6** に示す。

(a) 充填元からの投入状況　　(b) 流動障害の通過状況（充填先側）

図 5-6　充填性試験の実施状況

また、模擬試験体の物性試験を実施するため、**図 5-7** に示すように、各模擬試験体の充填元（充填材を投入した側）、充填先（流動障害を通過した側）からそれぞれ直径 50 mm×長さ 122 mm のコアを、上部・中央部・下部より各 3 本採取し、見かけの密度の算出と圧縮強度試験を実施した。なお、コア採取は、材齢 1 から 2 週で採取して、所定材齢まで 20 °C 封緘養生とした。

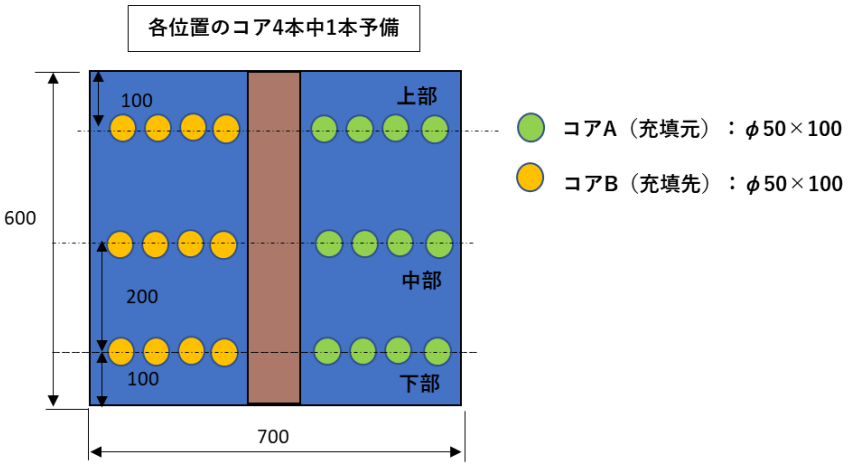


図 5-7　模擬試験体のコア採取位置

2)　　試験結果

試験に用いた廃棄体パッケージ内充填材のフレッシュ性状の測定結果を**表 5-8** に、充填性確認試験の結果を**表 5-9** に示す。また、**図 5-8** から**図 5-11** に脱型後の模擬試験体外観を示す

この結果から、練り上がり直後の 90 秒フローが 270 mm 程度（充填性試験実施前の 90 秒フロー250 mm 程度）の廃棄体パッケージ内充填材であれば、流動障害の幅や投入前の練り返しの有無によらず、投入速度を適切に調整することで、充填元と充填先で同じ高さに打設できることが確認できた。

圧縮強度及び見かけの密度の測定結果を**表 5-10** に示す。なお、表中には、参考値として流動性（練り上がり直後の 90 秒フロー）が同程度の配合における材齢 4 週の圧縮強度及び見かけ密度も併記した。

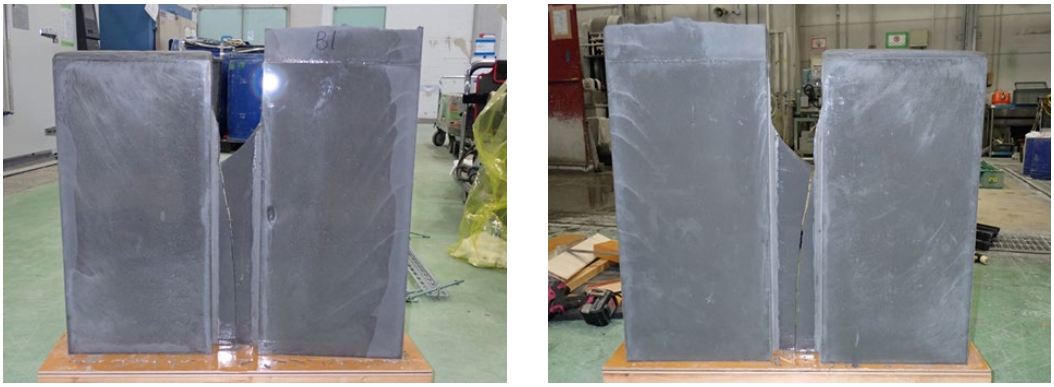
採取したコア供試体の圧縮強度は、充填先の方が充填元よりも低く、この傾向は特に充填先上部において顕著であった。見かけの密度についても、同様に、一部を除いて充填先の方が充填元よりも低い傾向が見られた。

表 5-8　充填性試験に用いた廃棄体パッケージ内充填材のフレッシュ性状の測定結果

試験ケース	設定配合	練り上がり直後				充填前（練り上がり 30 分後）			
		フロー値(mm)			200 mm 到達(秒)	フロー値(mm)			200 mm 到達(秒)
		90 秒	180 秒	300 秒		90 秒	180 秒	300 秒	
B1	基本配合より流動性が低い配合	256	267	273	12.2	218	228	229	37.8
B2	基本配合	270	289	297	9.0	247	265	271	17.6
B3	基本配合	271	286	294	10.1	250	262	270	16.2
B4	基本配合	267	284	293	8.5	245	263	272	20.5

表 5-9　充填性試験結果

試験ケース	設定配合	流動障害	試料投入前練返し有無	充填状況
B1	基本配合より流動性が低い配合	20 mm	有	・流動障害通過時に流れが著しく遅くなり、充填速度をかなり遅くして投入する必要がある。 ・充填元と充填先の高低差は 50 mm 程度生じた。
B2	基本配合	20 mm	有	・流動障害通過時に流れがやや遅くなるため、充填速度を調整するか、充填元の投入高さを高くすることで、振動無で自己充填される。 ・充填元と充填先の高低差はなかった。
B3	基本配合	44 mm	有	・流動障害通過時に流れが他試験ケースに比べ良好であり、振動無で自己充填される。 ・充填元と充填先の高低差はなかった。
B4	基本配合	20 mm	無	・流動障害通過時に流れがやや遅くなるため、充填速度を調整するか、充填元の投入高さを高くすることで、振動無で自己充填される、 ・充填元と充填先の高低差はなかった。



(a) アクリル板側　　(b) コンパネ板側

図 5-8　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B1

(a) アクリル板側　　(b) コンパネ板側

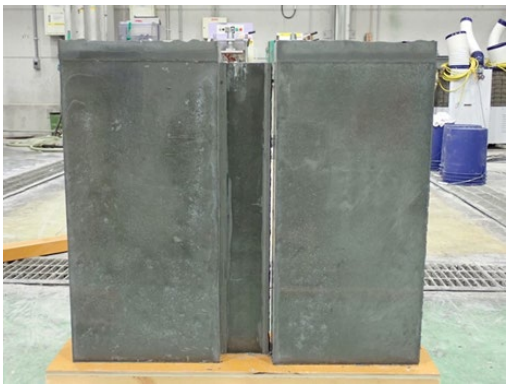
図 5-9　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B2

(a) アクリル板側

(b) コンパネ板側

図 5-10　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B3

(a) アクリル板側



(b) コンパネ板側

図 5-11　脱型後の模擬試験体外観　試験ケース B4

表 5-10　採取したコア供試体の圧縮強度及び見かけの密度の測定結果

試験ケース	高さ位置	圧縮強度（MPa）※			見かけの密度（g/cm³）※		
		充填先	充填元	参考値	充填先	充填元	参考値
B1	上部	139	155	173	2.35	2.39	2.43
	中部	146	154		2.36	2.38	
	下部	149	151		2.36	2.35	
B2	上部	131	143	175	2.34	2.32	2.42
	中部	139	158		2.35	2.40	
	下部	151	165		2.37	2.40	
B3	上部	133	142	175	2.33	2.34	2.42
	中部	146	153		2.35	2.39	
	下部	154	164		2.37	2.41	
B4	上部	152	176	175	2.41	2.45	2.42
	中部	152	166		2.43	2.41	
	下部	170	166		2.41	2.43	

※：同一箇所より採取したコア 3 本の平均値

(4) 落下解析に必要なパッケージ内充填材の物性値の取得

後述する「異常事象に対する安全性向上に係る検討」では、廃棄体パッケージの異常事象における安全性について評価するため、落下事象を想定したシミュレーションを実施している。

令和 5 年度は、プレキャスト方式によるパッケージ内充填材をモデル化し、次年度は、後充填方式に置き換えた場合のシミュレーションを実施する。そのため、入力データとして必要な高強度高緻密コンクリートの材料物性値を取得した。

各供試体の材齢は 4 週とし、試料数は 3 本とした。

① 圧縮強度
② 静弾性係数
③ ポアソン比
④ 引張強度
⑤ 鋼とパッケージ内充填材の動摩擦係数

圧縮強度、静弾性係数、ポアソン比及び引張強度試験結果を**表 5-11** に示す。

表 5-11 圧縮強度、静弾性係数、ポアソン比及び引張強度の試験結果

設定配合	試験結果			
	圧縮強度 (N/mm^2)	静弾性係数 (kN/mm^2)	ポアソン比	引張強度 (N/mm^2)
基本配合	176	44.5	0.231	5.55

鋼とパッケージ内充填材の動摩擦係数の測定については、特に公定法のようなものは存在していないため、代替法として、丸鋼とパッケージ内充填材の付着強度試験である JSTM C 2101「引抜き試験による鉄筋とコンクリートの付着強さ試験方法」を参考にした。

付着強度試験の概略図を**図 5-12** に示す。試験の実施にあたり、以下の点に留意した。

・直径 16 mm の丸棒を使用し、黒皮付きのまま試験に供した。
・試験体の形状は、JSTM C 2101-1999 の規格通りの立方体とした。
・載荷速度は、既往文献にある 80 N/s に近づけられるように制御した。

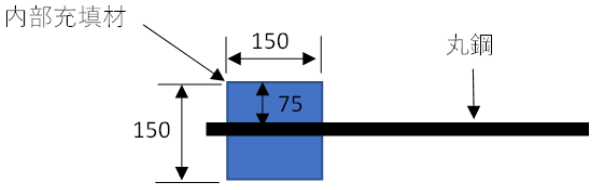


図 5-12 丸鋼とパッケージ内充填材の付着強度試験用供試体の概要

付着強度試験の結果を**表 5-22** に、すべり量と付着応力度の関係を**図 5-13** に示す。丸鋼との付着強度は、0.002D の付着応力度が 11.9 N/mm^2、最大付着応力度が 15.0 N/mm^2 であった。

なお、この試験では、丸鋼とパッケージ内充填材の付着強度の把握を目的としているため、試験方法に規定されている「コンクリートの圧縮強度に対する補正係数」については考慮していない。

表 5-12　丸鋼と充填材の付着強度試験結果

設定配合	供試体 No.	試験結果	
		0.002D の付着応力度 (N/mm²)	最大付着応力度 (N/mm²)
基本配合	No.1	12.8	16.4
	No.2	12.4	14.5
	No.3	10.5	14.1
	平均	11.9	15.0

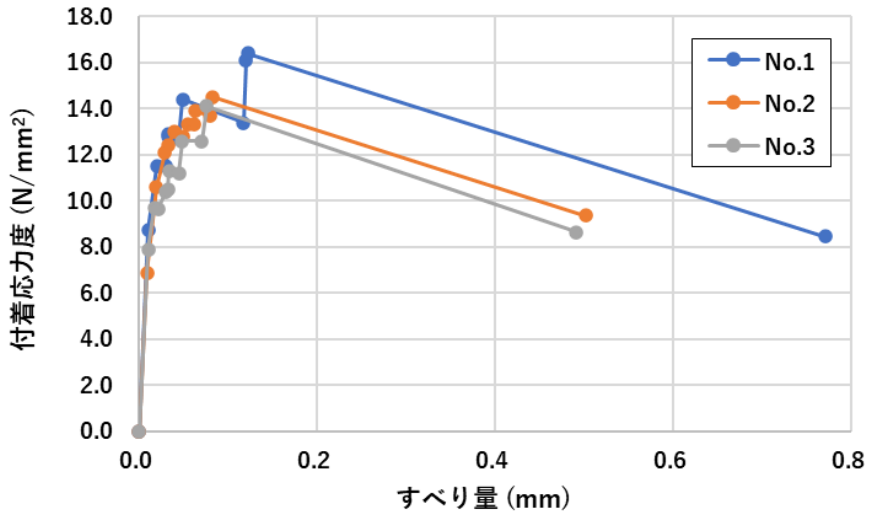


図 5-13　すべり量と付着応力度の関係

5.2.3. 実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価

(1) 背景と目的

TRU 廃棄体パッケージには、図 5-14 に示すように、廃棄体封入から閉鎖後 300 年程度までの期間、閉じ込め性能が求められている。しかし、廃棄体パッケージの構造上、耐食性及び構造健全性の観点から最弱部となり得る蓋溶接部においては、再冠水後の局部腐食の進展や静水圧の作用といった閉じ込め性能の損失に繋がる影響要因が想定される。そのため、閉鎖後 300 年をめやすとしたこの過渡的な期間の溶接部の健全性について、適正に評価する必要がある。

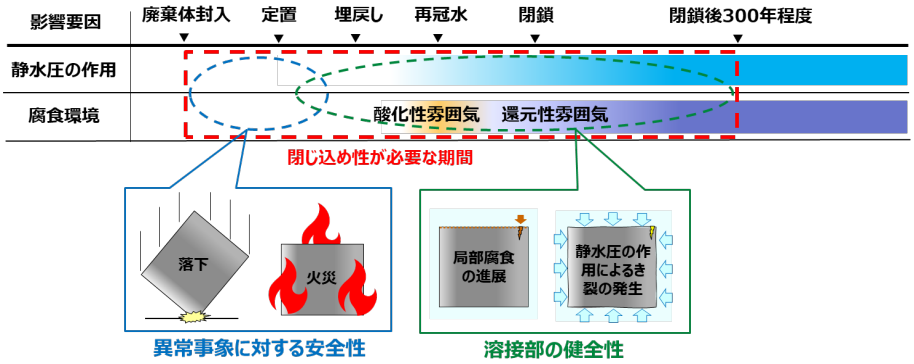


図 5-14 廃棄体パッケージに求められる閉じ込め性能

先行事業では、廃棄体パッケージ B を対象に、製作性や構造健全性に関する技術的な課題に取り組み、製作技術を整備することを目的とした研究開発を実施し、実際の製作工程を想定して実規模の角型廃棄体パッケージを製作することで実証的に確認した（図 5-15）。

しかしながら、閉鎖後長期の蓋溶接部の健全性については、未だ明確な評価がなされていないことが課題とされている。

図 5-15 先行事業で製作した実規模廃棄体パッケージ

そこで、本検討では、この課題の解決に向けて、先行事業で製作した廃棄体パッケージから試験片や分析サンプルを用いて、実際の製作工程を経た蓋溶接部の状態に関するデータを取得し、製作による影響やバラツキといった材料の変質や、環境条件に応じた腐食挙動といった観点から廃棄体パッケージの溶接部の健全性について評価することを目的とする。

(2)　廃棄体パッケージの解体と試験片の製作

1)実規模廃棄体パッケージの切断

実規模廃棄体パッケージから各種試験片及び分析サンプルを採取するにあたり、まずは、その前工程として加工しやすいサイズにするため、**図 5-16** に示すように容器本体を分割する必要がある。

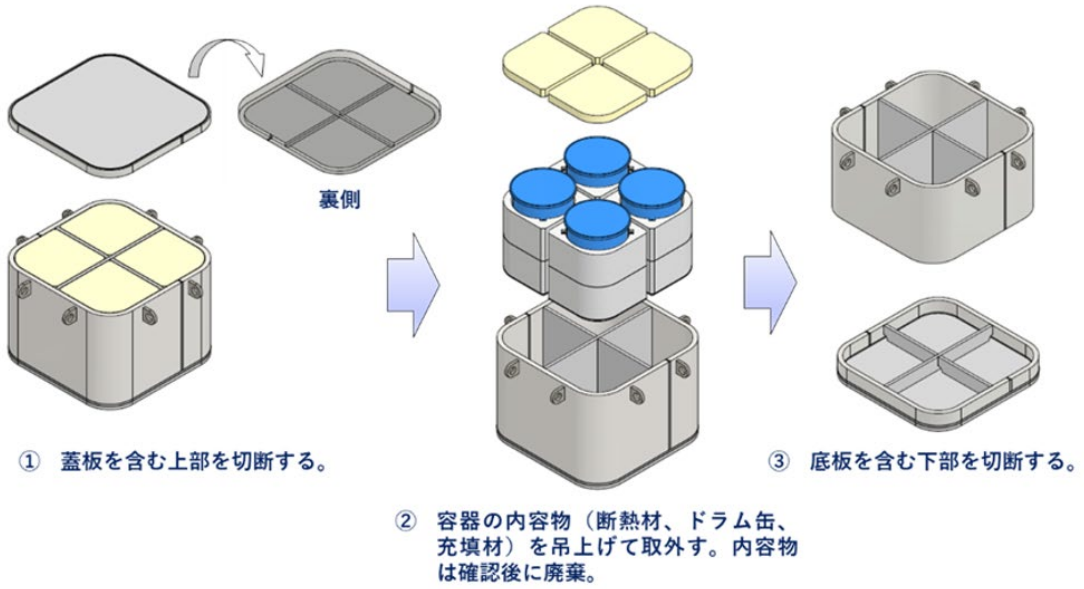


図 5-16　廃棄体パッケージの切断イメージ

一般に、大型鋼構造物の切断方法としては、ガス溶断、ウォータージェット工法、ダイヤモンドワイヤーソー工法などが候補に挙がるが、今回は、蓋溶接部に影響がなく、かつ、内容物（断熱材、模擬廃棄体、プレキャスト製パッケージ内充填材）を損傷なく取り出すことを前提にしたため、ガス溶断やウォータージェット工法といった方法は除外し、乾式によるダイヤモンドワイヤーソー工法を採用した。

切断位置は**図 5-17** に示すように、上部は容器上面から 90～100 mm 下方、下部は容器底面から 200～300 mm 上方とし、内容物を避け基本的には容器胴体と内部の十字鋼板を切断対象とした（断熱材は非常に脆い材質のため対象には含めない）。上部の切断位置は、蓋上面から容器側面の吊り金具までの寸法 118 mm のうち、蓋板（板厚 50 mm）との干渉を避けるため、蓋上面から 50 mm 下方から吊り金具までの 68 mm の間となる。したがって、切断位置の目安を便宜的に上面から 90～100 mm 下方とした。図面上、上部、下部ともに、切断面積は 354969.8 mm^2 である。

実際の切断状況を**図 5-18** に示す。

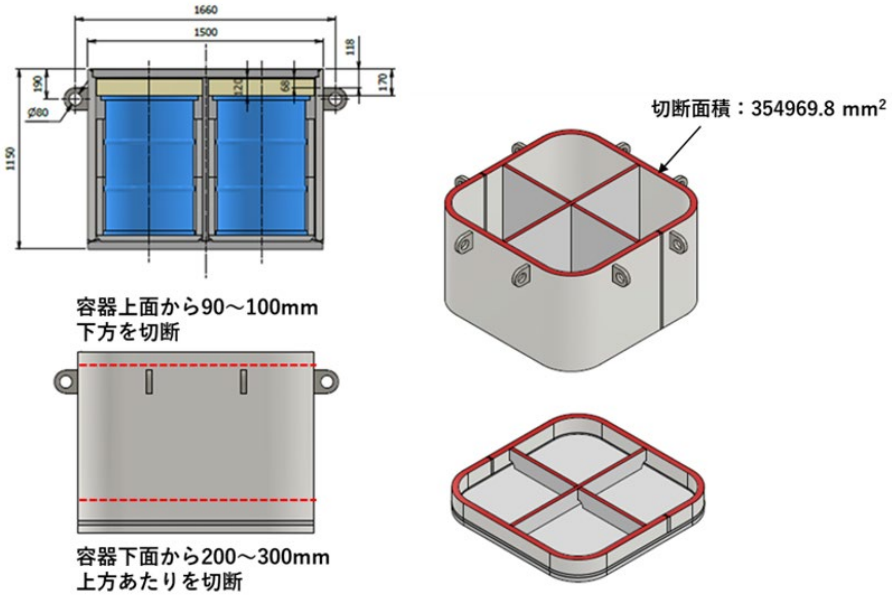


図 5-17　廃棄体パッケージの切断位置

(a) 上部の切断

(b) 下部の切断

図 5-18　乾式ダイヤモンドワイヤーソー工法による切断状況

2)　　各種試験片の製作

切断した部材を図 5-19 に示す。各種試験片及び分析用サンプルは「蓋板含む上部」、「胴板部」、「底板含む下部」の 3 つの部材からそれぞれ採取したが、ここでは、「蓋板含む上部」の試験片採取位置と各番号の割当を図 5-20 と表 5-13 に示す。

(a)蓋板含む上部　　(b) 胴板部　　(c) 底板含む下部

図 5-19　切断した部材

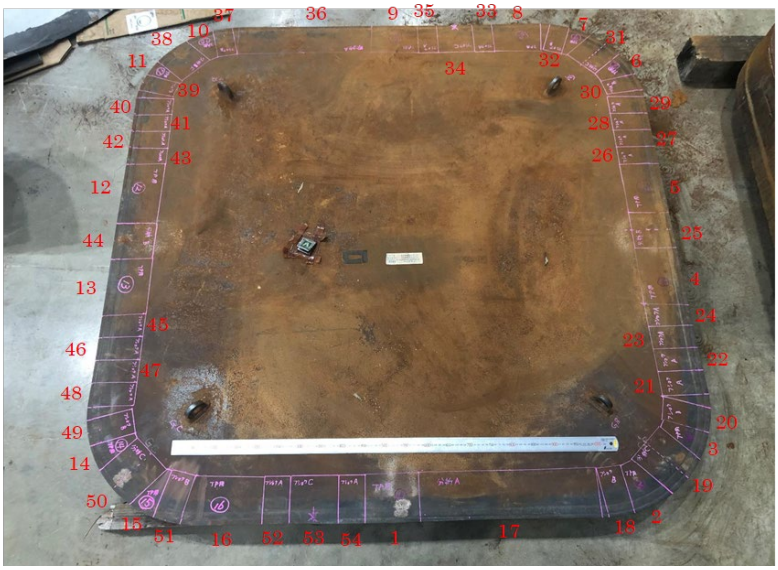


図 5-20　試験片採取位置及び番号の割当（蓋板含む上部）

表 5-13　試験片名と各番号の割当（蓋板含む上部）

試験片名	番号
材料試験用ブロック	1～16
分析用残材 A	17，26
分析用残材 B	25，44
分析用残材 C	19，31，38，50
腐食試験片 A	21～24，26～29，33，35， 40～43，45～48，52，54
腐食試験片 B	18，20，30，32，37，39，49，51
腐食試験片 C	34，53
引張試験片（溶接方向）	1，3，4，7，9，12，14，15
引張試験片（溶接直交方向）	1，2，4，6，9，10，11，12
曲げ試験片	1，2，4，6，9，10，11，12
マクロ試験片	1，4，9，12

(3)　材料試験

「蓋板含む上部」から採取した試験片を用いて、以下の材料試験を実施した。

・引張試験
・曲げ試験
・断面マクロ試験
・硬さ試験（断面マクロ試験片の 1 試料に対し実施）

なお、材料試験を実施するにあたり、**表 5-14** 先行事業で実施したティグ溶接試験体による継手性能及び機械的性質確認試験の結果及び判定基準を参照した。

表 5-14　先行事業で実施した溶接部の継手性能及び機械的性質確認試験（ティグ溶接）

試験項目		PWHT ※ あり/なし	試験片本数	評価項目	判定基準
放射線透過試験（RT）		PWHT 前に試験を実施	各 1	―	JIS Z 3104 の判定基準による
断面マクロ試験			各 1	―	参考用（判定基準は設けない）
硬さ試験		PWHT あり	1	ビッカース硬さ	参考用（判定基準は設けない）
引張試験			2	引張強さ	570 (MPa) 以上
				破断位置	参考用（報告のみ）
シャルピー衝撃試験	溶接金属		3	吸収エネルギー (試験温度 : -5℃)	47 (J) 以上
	ボンド部		3		

※ 廃棄体パッケージの蓋溶接部に対しては、応力腐食割れ（SCC : Stress Corrosion Cracking）の発生要因の一つである引張残留応力を低減することを目的に、溶接後熱処理（PWHT: Post Weld Heat Treatment）を実施する。

1)　引張試験

引張試験に用いた試験片形状を**図 5-21** に、試験条件を**表 5-15** に示す。なお、引張試験片は、溶接部から溶接線方向と溶接線直交方向の 2 方向から採取し、溶接線直交方向については、試験片の中央辺りに溶接部が位置し、その両脇はそれぞれ蓋板及び側板の母材となる。

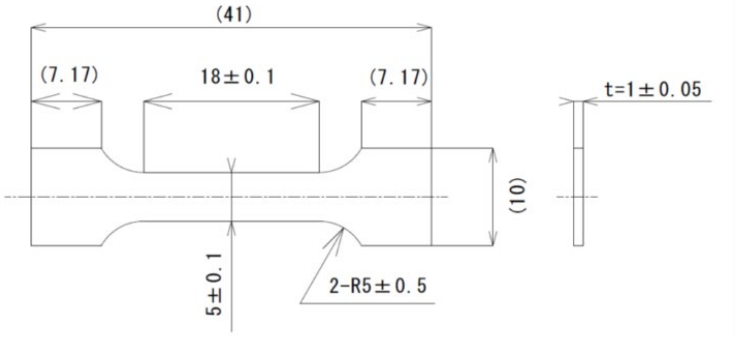


図 5-21　蓋溶接部から採取した引張試験片形状

表 5-15　引張試験の試験条件

試験規格（参考）	JIS Z 2241：2022 金属材料引張試験方法
試験本数	16 本
試験温度	23 °C ± 5 °C（室温）
試験速度	0.001 mm/mm/sec

引張試験の試験前と試験後の写真を図 5-22 に示す。

破断位置については、溶接線方向の試験片は全て標点間の中心から標点距離の 1/4 以内で破断しており、溶接線直交方向の試験片は全てが中央の溶接金属部ではなく、左右の蓋側または胴側の母材部で破断していた。

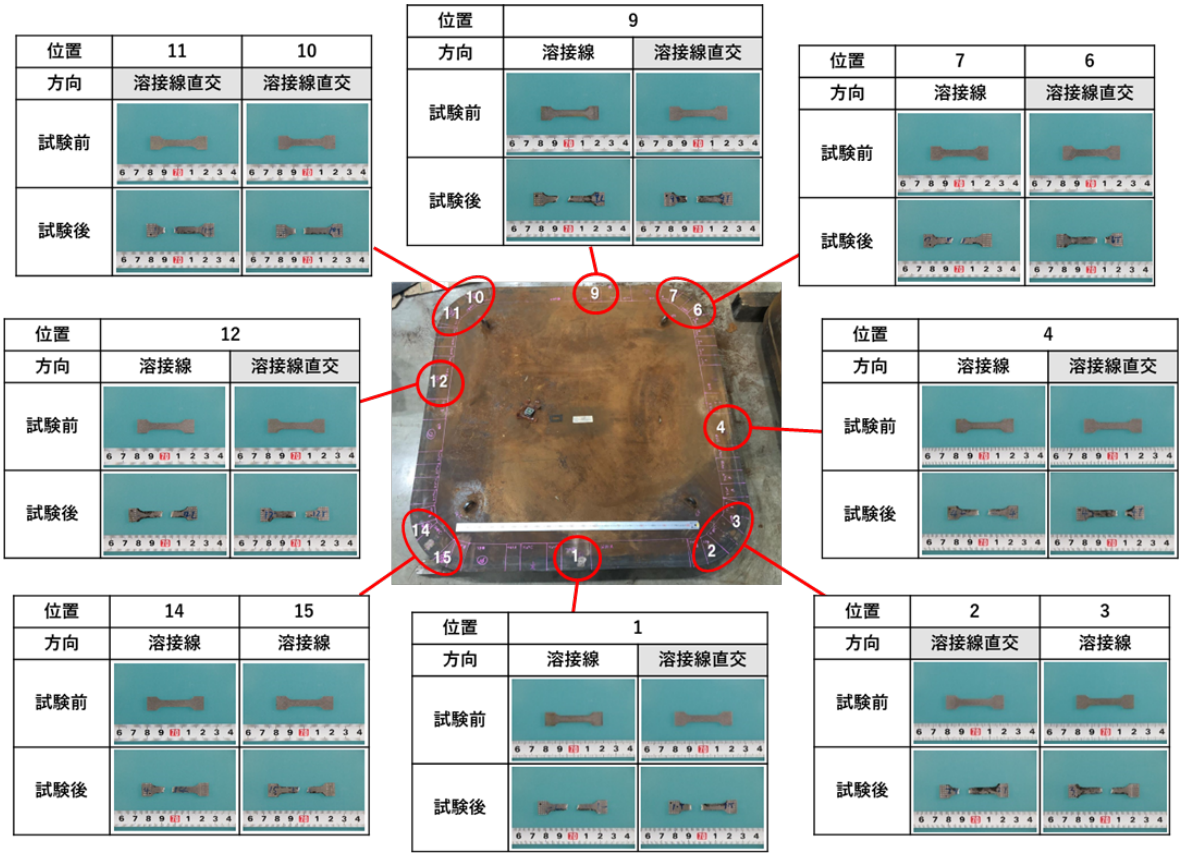


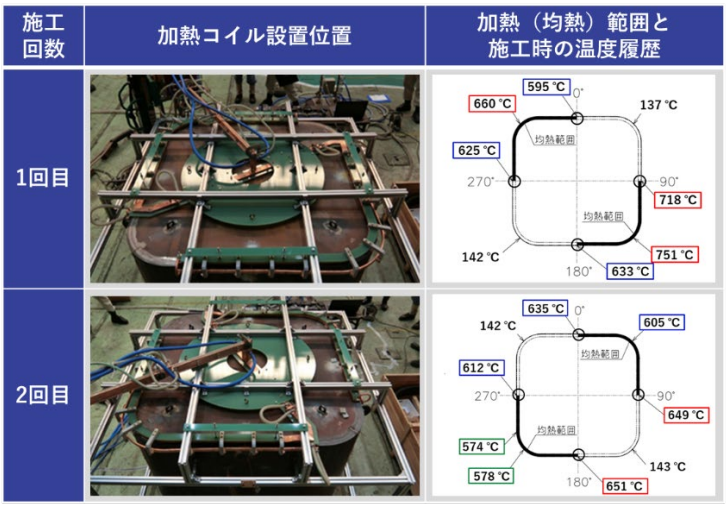
図 5-22　蓋溶接部の引張試験結果（試験前と試験後）

ここで、今回の引張試験の結果と比較するため、実規模廃棄体パッケージの容器本体の製作に使用した鋼材及び溶材のミルシートのデータを表 5-16 に示す。

また、令和 4 年度の実規模廃棄体パッケージの製作時に、蓋溶接部の残留応力を改善することを目的に実施した溶接後熱処理（PWHT）施工試験時の熱履歴も参考とする。PWHT 施工試験については、電気設備的な問題から 1 回で蓋溶接部全域を加熱することが難しく、図 5-23 に示すように 2 回に分けて施工しており、図にはそれぞれ各部位における保持温度時の温度分布を表示している。

表 5-16　ミルシートの材料データ

		0.2 %耐力（MPa）	引張強さ（MPa）	破断伸び（%）
鋼材	SM570TMC	556	637	31
溶材	TG-S60A	609	709	25



※　直線部の中央の4点（○の位置）では、加熱コイルの構造上、1回目、2回目ともに加熱範囲に含まれる。
※　図中の施工時の温度履歴の値は、PWHT施工条件（595～635℃）に対し、範囲内、超過、未達を表す。

図 5-23　蓋溶接部の PWHT 施工試験

これらのデータを参考に、今回の引張試験の結果を表 5-17 に示す。表中の(a)溶接線直交方向は、破断位置がすべて試験片中央の溶接部ではなく母材部であったため、ミルシートの材料データの鋼材（SM570TMC）の値を参照した。また、(b)溶接線方向では、溶接部から採取した試験片であるため、ミルシートの材料データの溶材（TG-S60A）を参照した。いずれもミルシートの値より低い数値は赤字で表記している。

表 5-17　蓋溶接部の引張試験結果

(a) 溶接線直交方向

試験片採取位置		0.2%耐力 MPa	引張強さ MPa	PWHT熱履歴 1回目 ℃	PWHT熱履歴 2回目 ℃
1	直線部	467	581	633	651
2	R部	425	545	751	143
4	直線部	404	540	718	649
6	R部	523	601	137	605
9	直線部	470	596	595	635
10	R部	466	575	660	142
11	R部	492	585	660	142
12	直線部	474	593	625	612

(b) 溶接線方向

試験片採取位置		0.2%耐力 MPa	引張強さ MPa	PWHT熱履歴 1回目 ℃	PWHT熱履歴 2回目 ℃
1	直線部	679	735	633	651
3	R部	471	689	751	143
4	直線部	575	662	718	649
7	R部	670	762	137	605
9	直線部	699	759	595	635
12	直線部	690	756	625	612
14	R部	666	753	142	578
15	R部	661	747	142	578

この表から、実規模廃棄体パッケージから採取した試験片の結果は、ミルシートの値に比べて低い傾向であることがわかった。また、**図 5-24** に示すように、溶接線直交方向の、「2」、「4」の部位や、溶接線方向の「3」、「4」の部位は、他の部位に比べても顕著な差があり、**図 5-22** の試験片採取位置で見ると、「2」、「3」、「4」あたりに該当している。従って、PWHT 施工試験のときの温度超過が要因であると考えられる。

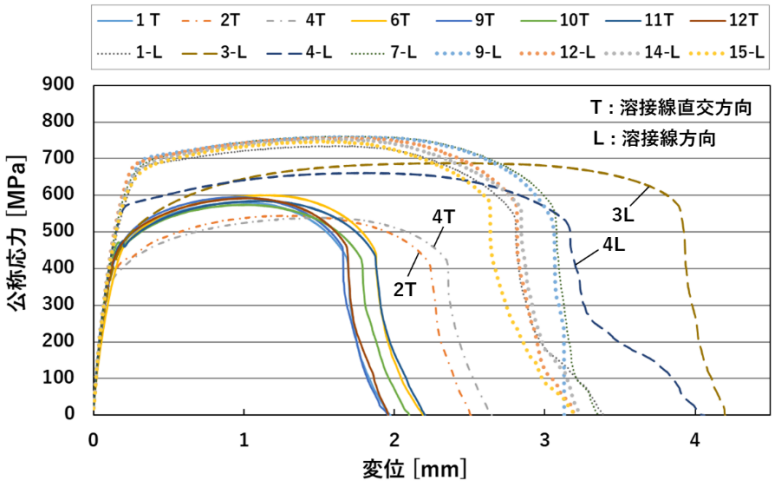


図 5-24　蓋溶接部の静的引張試験結果（公称応力と変位）

2)　曲げ試験

曲げ試験の試験片形状を**図 5-25** に、試験条件を**表 5-18** に示す。

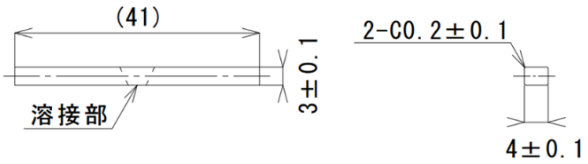


図 5-25　曲げ試験片形状

表 5-18　曲げ試験の試験条件

試験規格（参考）	JIS Z 2248：2022 金属材料曲げ試験方法
試験本数	8 本
曲げ方法	3 点曲げ
曲げ方向	表曲げ、裏曲げ（各 4 本ずつ）
試験温度	23 °C ± 5 °C（室温）
試験速度	1 mm/min
支点間形状および支点間距離	上部試験治具先端半径(r)：5 mm 下部支点治具間距離：2 t + 2 r (+5 mm,-0 mm) (r：上部試験治具先端半径、t：試験片厚さ)
曲げ角度	180 °

曲げ試験結果を図 5-26 に示す。令和 3 年度に実施した溶接部の継手性能及び機械的性質確認試験では、曲げ試験は側曲げ方法で実施され、かつ、PWHT なしの試験体のみで実施された。

この時の判定基準は、「3 mm 以上の割れがなく、割れ長さの合計が 7 mm 以上でないこと」とあり、その判定基準を用いると今回の試験結果は全て合格であった。

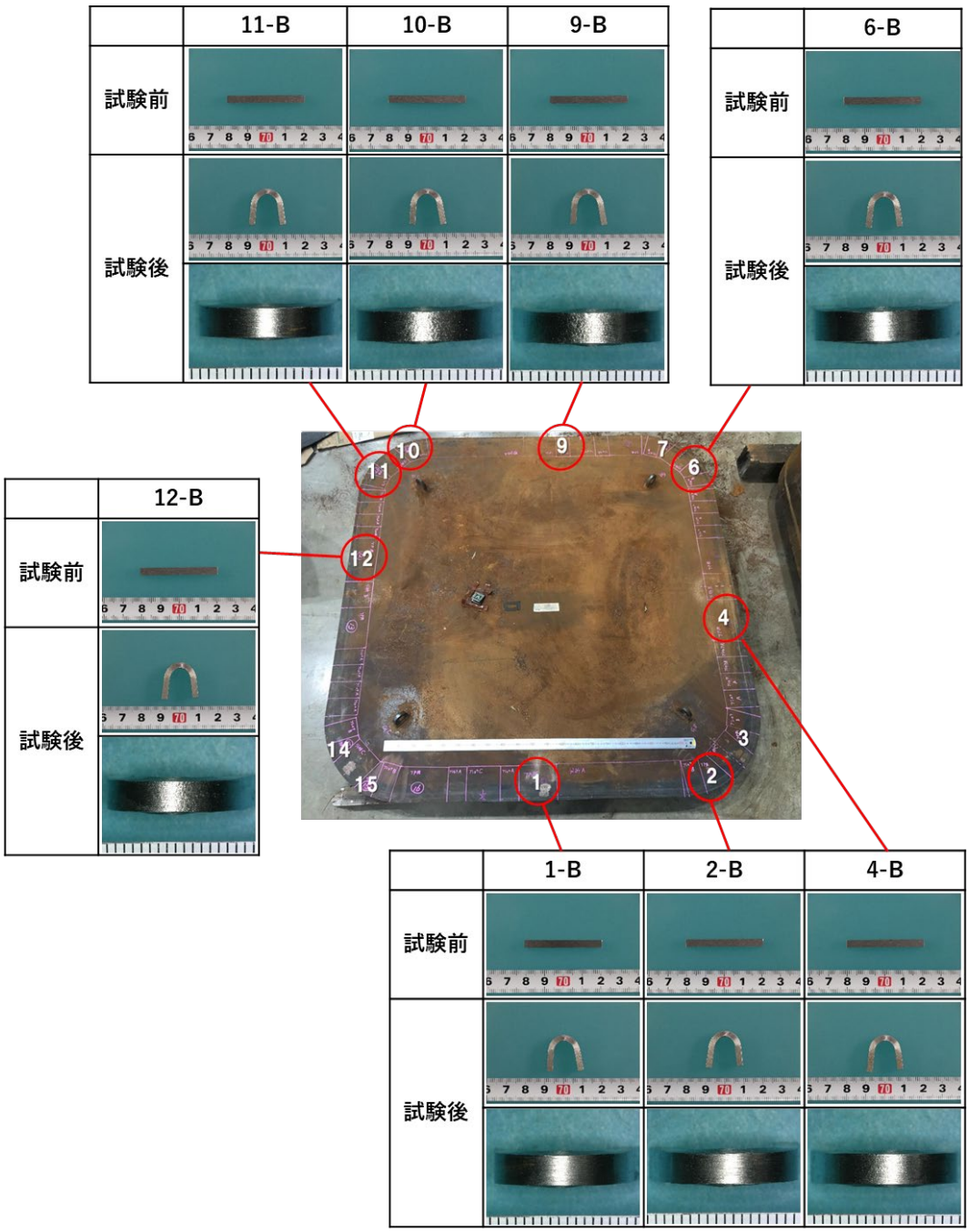


図 5-26　曲げ試験結果

3)　断面マクロ試験

断面マクロ試験の結果を図 5-27 に示す。いずれの試験片も初層部の溶け込みが十分得られており、且つ有害な溶接欠陥も観察されなかった。

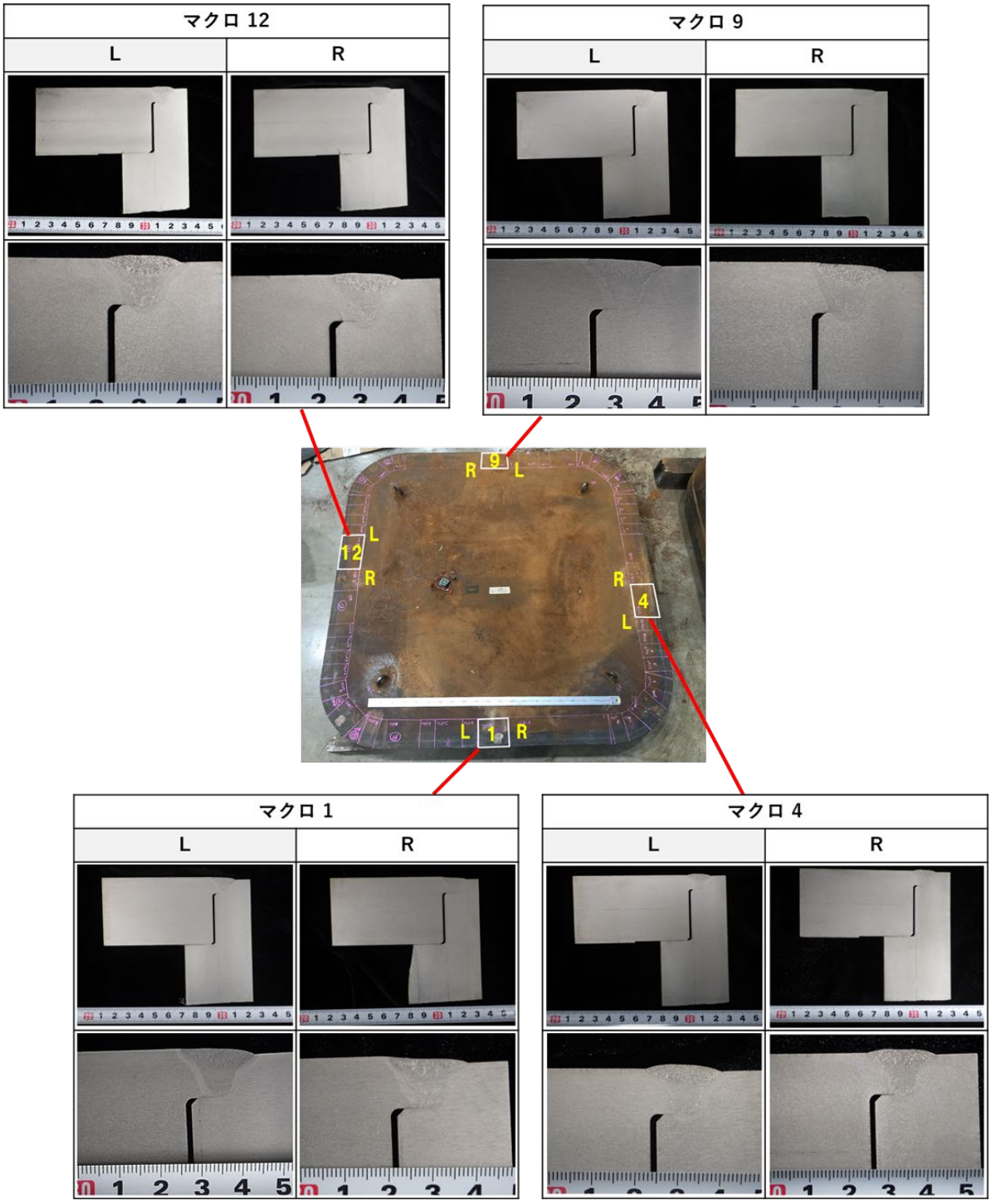


図 5-27　断面マクロ試験結果

4)　硬さ試験

断面マクロ試験片のうち、令和 5 年度は「マクロ 1-R」の試験片を使用して硬さ試験を実施した。試験条件を**表 5-19** に、試験結果を**図 5-28** に示す。

表 5-19　硬さ試験の試験条件

試験規格（参考）	JIS Z2244-1:2020
試験条件	HV(0.5)
試験温度	23 °C ±5 °C（室温）
注記	断面マクロ試験片のうちマクロ 1-R を使用

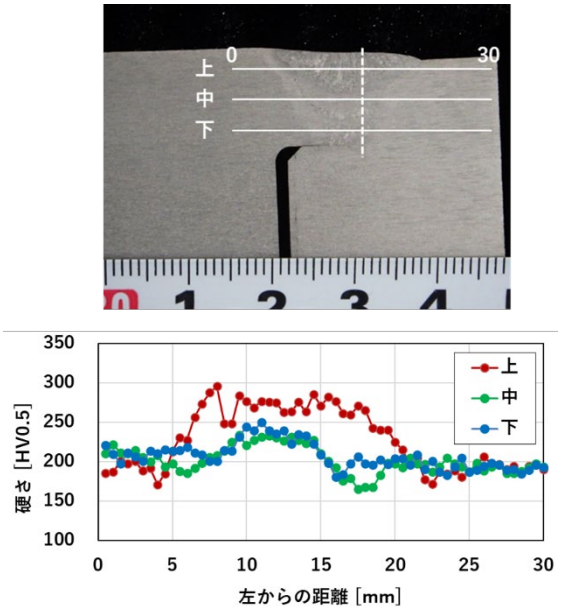


図 5-28　マクロ 1-R の硬さ試験結果

溶接金属部の上部の硬さは、250～300 HV で、中央、下部ともに溶接金属部－熱影響部－母材部を通して著しい硬化部はなく、全ての箇所において低温割れ防止の目安とされる 350 HV 以下であった。

参考として、先行事業で実施した溶接試験体による硬さ試験結果のうち、PWHT ありの試験結果と今回の試験結果との比較を**図 5-29** に示す。このときの試験結果は、溶接金属部の硬さは PWHT なしで 211～313 HV、PWHT ありで 203～267 HV であり、熱影響部の硬さは PWHT なしで 230～250 HV、PWHT ありで 214～223 HV であった。なお、両者で HV 0.2 及び HV 0.5 と試験力（圧子を押し込む力、単位は N）が異なるが、通常、試験力が低いほど測定結果のばらつきが大きくなりやすく、負荷可能な最大の試験力で測定することが望ましいとされている。

今回の試験結果は、上記の PWHT ありとなしの結果の間に位置する。引張試験の時と同様に**図 5-23** の PWHT の熱履歴と照らし合わせてみると、試験片「マクロ 1-R」の採取した位置の近傍では、1 回目の施工時に 633 °C、2 回目の施工時に 651 °C と、概ね PWHT 施工条件の狙い値に近く、過度に加熱された形跡はない。そのため、当該部位における硬さ試験の結果は妥当であると言える。

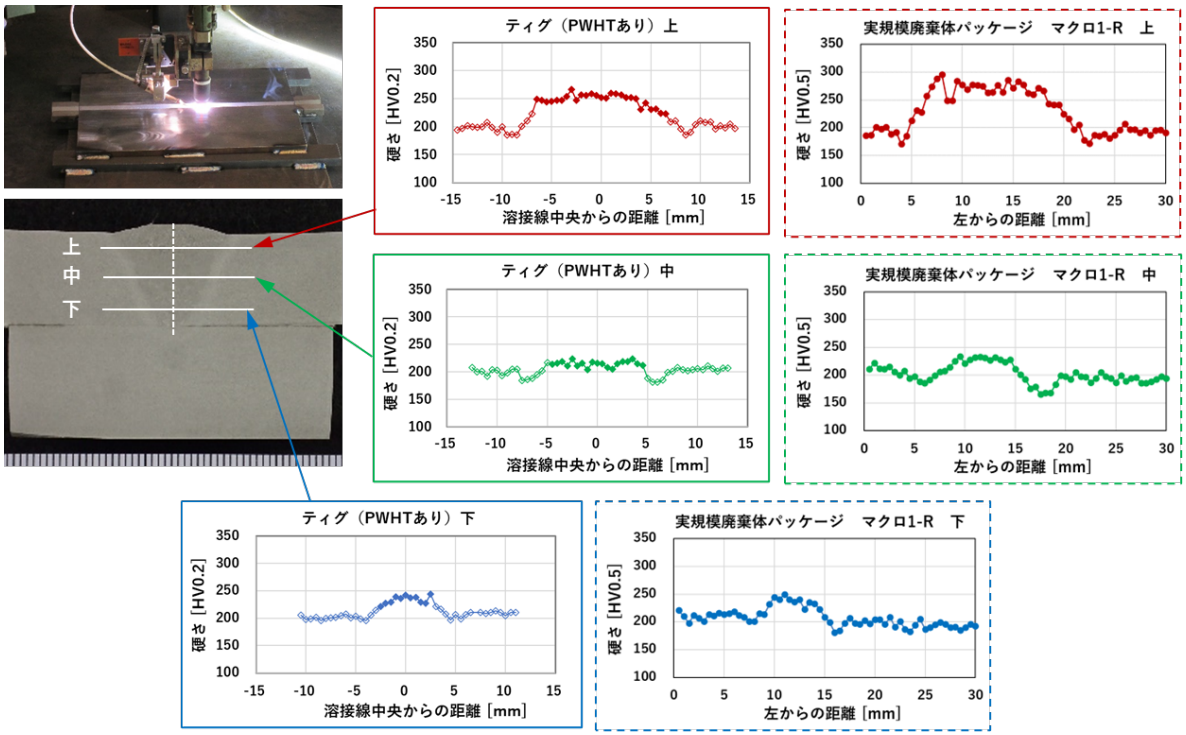


図 5-29　先行事業で実施した溶接試験体による硬さ試験結果との比較

(4)　溶接部の腐食試験

定置後の廃棄体パッケージが置かれる環境は、アルカリ条件であることが想定され、この条件下では、特に溶接部については腐食の局在化による局部腐食の発生が懸念される。そのため、閉鎖後長期の溶接部の健全性について評価するためにも、このような環境を模擬した腐食試験を実施し、腐食挙動に関するデータを取得する必要がある。

試験条件を**表 5-20** に示す。

表 5-20　浸漬試験条件

試験片	試験溶液	試験温度	締付けトルク	浸漬期間	試料数
SM570 TIG 溶接	塩化ナトリウム＋ 炭酸ナトリウム （pH=11 程度に調整）	80 °C	0.8 N・m	30 日 60 日 90 日 180 日 360 日	各 n=2

試験片は、**表 5-13** の「腐食試験片 A」を使用し、**図 5-30** に示すように、平面研削盤で板厚を 5 mm から 2 mm に削り、溶接境界が穴中央となるよう穴加工した。なお、試験前と試験後で腐食の局在化や進展具合を確認できるように、**図 5-31** のように腐食試験片のマクロ組織を観察し、溶接金属部の幅と熱影響部を含めた幅を記録した。

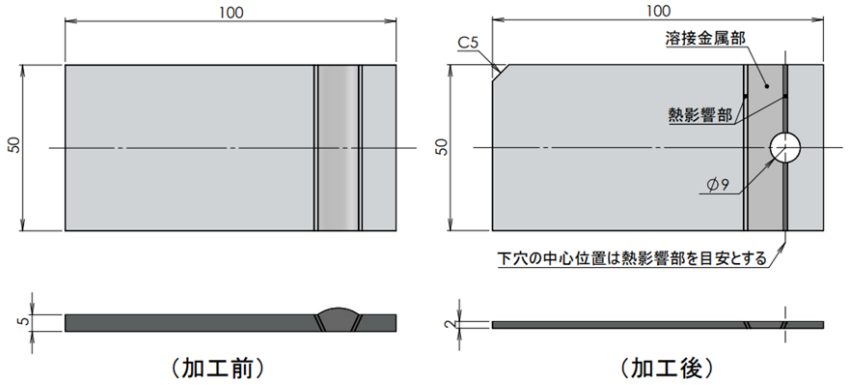


図 5-30　腐食試験片の加工

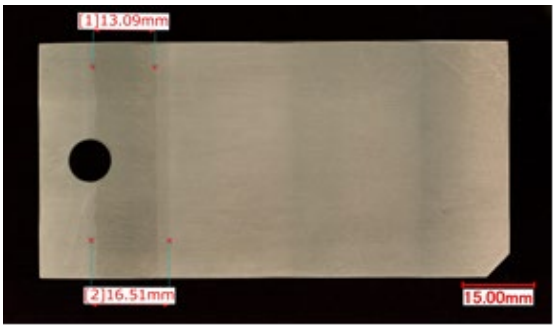


図 5-31　腐食試験片のマクロ観察

また、今回の試験では、図 5-32 のように、試験片の溶接部に穴加工した部位に樹脂製（ポリサルフォン）の円筒部材を両面に取り付けてボルトで固定している。これは、固体との接触端に生じる微小なすき間構造を試験片に付与するためのすき間形成材であり、この微小すき間を起点として、優先的に局部腐食を生起させることで保守的な結果を得ることができる。今回の試験条件のような、弱アルカリ環境における炭素鋼の局部腐食を評価する手法として用いられる常套手段である。

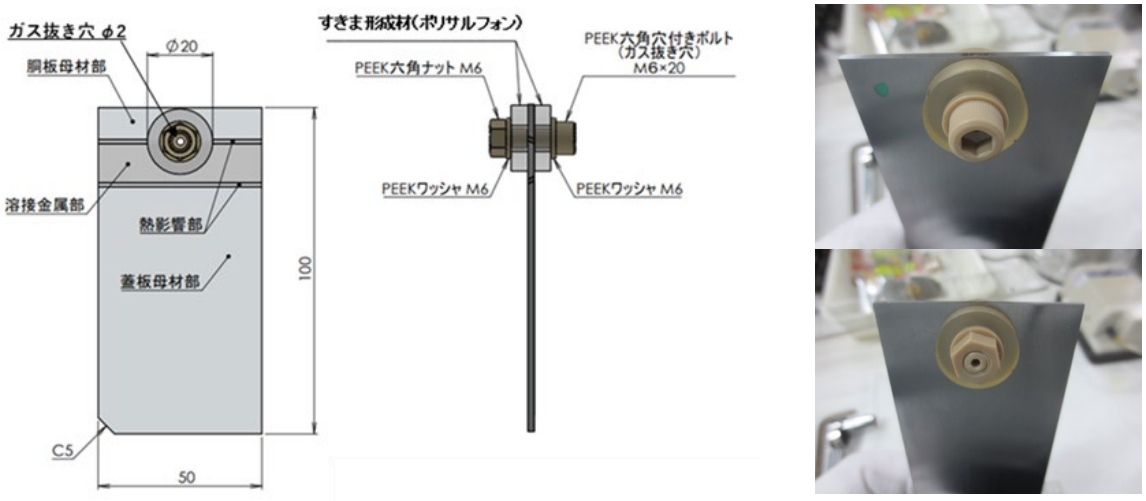


図 5-32　腐食試験片の外観

浸漬試験装置の略式図を図 5-33 に、試験の実施状況の写真を図 5-34 を示す。
なお、試験片の取出し及び分析は、令和 6 年度実施予定である。

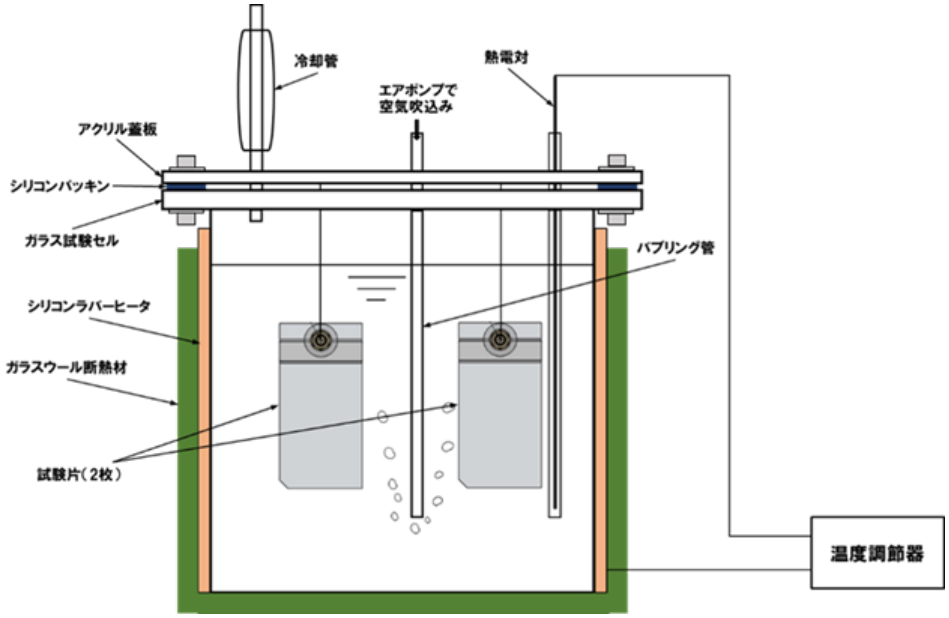


図 5-33　試験装置の概略図

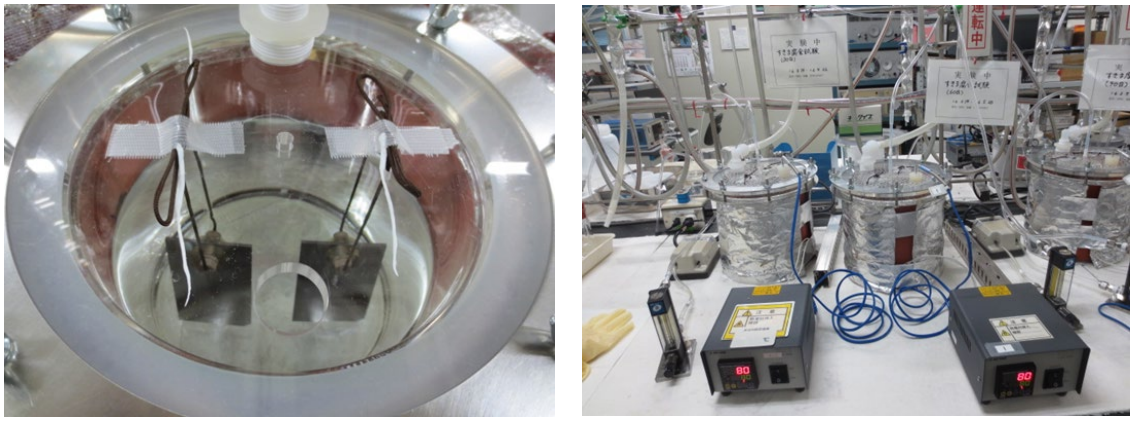


図 5-34　試験の実施状況

(5) 令和 5 年度の実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価のまとめ

令和 5 年度では、実規模廃棄体パッケージの蓋溶接部から各種試験片を採取し、製作工程を経た溶接部の状態に関するデータの取得を開始した。

静的引張試験の結果から、蓋溶接部には材料強度が異なる部位が存在することがわかった。これは、PWHT 施工確認試験時に過度に加熱された部位と位置が重なることから、加熱により軟化した可能性が考えられる。

溶接部の健全性を評価するためには、アルカリ条件での腐食データや材料が軟化した部位のミクロ組織や硬さ試験など、さらに詳細なデータを得た上での考察が必要である。

5.2.4. 異常事象に対する安全性向上に係る検討

(1) 背景と目的

人工バリアの構成要素の一つである廃棄体パッケージには、図 5-35 に示すように、廃棄体を封入した直後から閉鎖後 300 年程度までの期間、閉じ込め性能を維持することが求められている。この期間のうち、主に操業時では、落下事象や火災といった異常事象の発生が想定されるが、当然、そのような場合においても、安全性の観点から閉じ込め性能を維持しなければならない。

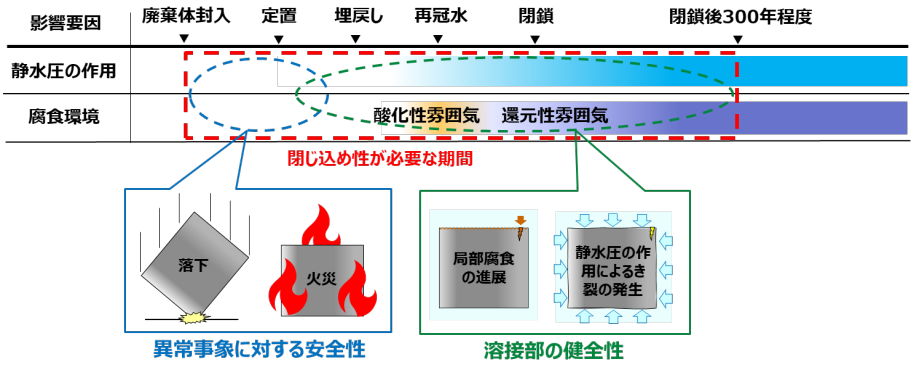


図 5-35 廃棄体パッケージに求められる閉じ込め性能（再掲）

これは、地層処分研究開発に関する全体計画 （平成 30 年度から令和 4 年度）においても、異常事象のうち操業時の落下事象を想定したシミュレーションを実施し閉じ込め性能を評価するとともに、廃棄体パッケージの設計・製作技術の向上に反映するための情報を得ることの必要性が示されている。

このような背景から、本検討では、廃棄体パッケージの安全性の向上を図る上で必要な情報を得ることを目的に、現実的な解析モデルによる現実的な材料データを用いて異常事象を対象にしたシミュレーションを実施する。

現実的な解析モデルについては、先行事業で製作したプレキャスト方式によるパッケージ内充填材を有する実規模廃棄体パッケージをモデル化する。一方、現実的な材料データについては、実規模廃棄体パッケージの蓋溶接部から採取した試験片を用いて高速引張試験を実施し、そのデータを基にひずみ速度依存性を考慮した材料モデルを作成し、それを落下解析に適用する。

ひずみ速度依存性を考慮した材料モデルについては、均質変形域から破壊を伴う大ひずみ域にわたり広いひずみ速度域の挙動を高精度に表すことができ、かつ、比較的、パラメータの取得が容易な谷村・三村モデル（T-M2009 モデル）を使用した。

(2) 高速引張試験片の製作

ひずみ速度依存性に関するデータを取得するため、実規模廃棄体パッケージ容器の蓋溶接部から切り出した部材から高速引張試験片を製作した。試験片の形状は、平行部幅が 1.5 mm と 1.0 mm の 2 種類グリップレス型とし、母材部、溶接金属部、熱影響部から以下の 4 種類の試験片を各 25 個（計 100 個）製作した。

- Type 1-A ：平行部（1.5 mm）が母材部で溶接線と同じ方向から採取
- Type 1-B ：平行部（1.5 mm）が溶接金属部で溶接線と同じ方向から採取
- Type 1-C ：平行部（1.5 mm）が溶接金属部で溶接線に対し直交方向から採取
- Type 2 ：平行部（1.0 mm）が熱影響部で溶接線と同じ方向から採取

図 5-36 に試験片を製作するために蓋溶接部から切り出したブロック部材を、図 5-37 及び図 5-38 に試験片の形状と採取した方向をそれぞれ示す。

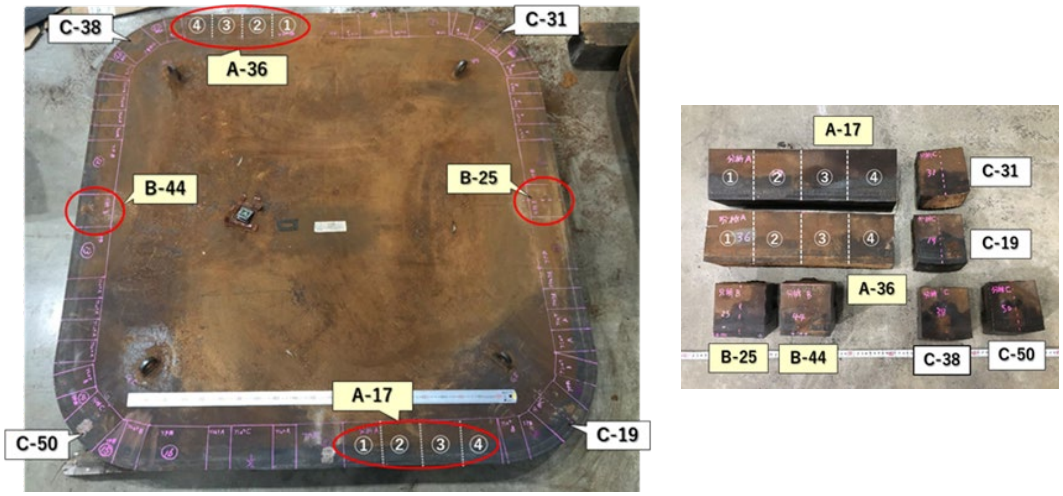
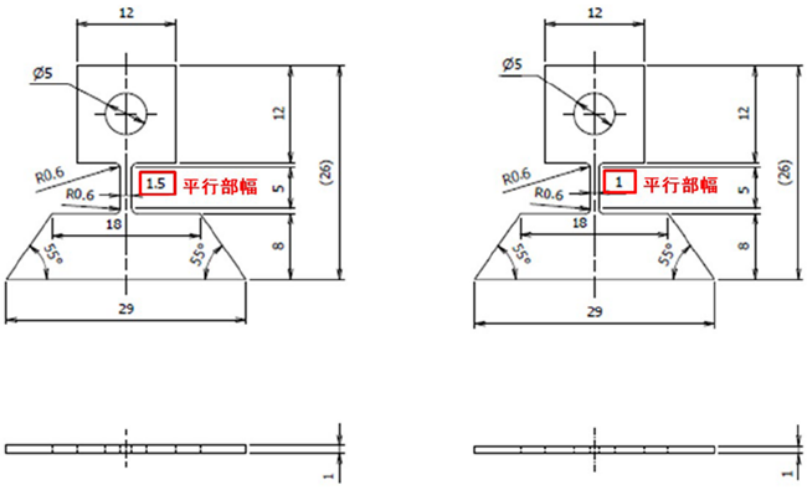


図 5-36　蓋溶接部から切出したブロック部材



(a) Type1（A、B、C 共通）　　(b) Type2

図 5-37　グリップレス型試験片の形状

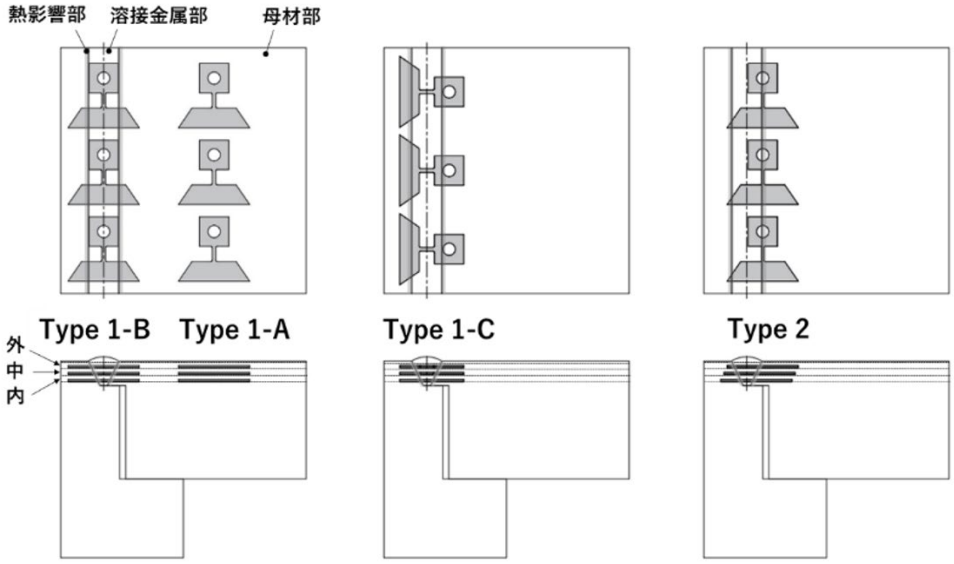


図 5-38　試験片を採取した方向

高速引張試験の試験水準を**表 5-21** に示す。

表 5-21　高速引張試験の試験水準

No	ひずみ速度	引張速度※1		試験片の種類と数量			
				母材部	溶接金属部		熱影響部
	1/s	mm/s	m/s	Type 1-A	Type 1-B	Type 1-C	Type 2
1	0.01※2	0.05	0.00005	5	5	5	5
2	1	5	0.005	5	5	5	5
3	100	500	0.5	5	5	5	5
4	800※3	4000	4	5	5	5	5
予備				5	5	5	5
合計 100				25	25	25	25

※1 試験片平行部長さを 5 mm として算出

※2 静的

※3 自動車衝突 60 km/h 相当

(3)　高速引張試験の実施

高速引張試験は、**図 5-39** に示す検力ブロック式高速度試験装置を用いて、**表 5-22** に示す試験条件で実施した。

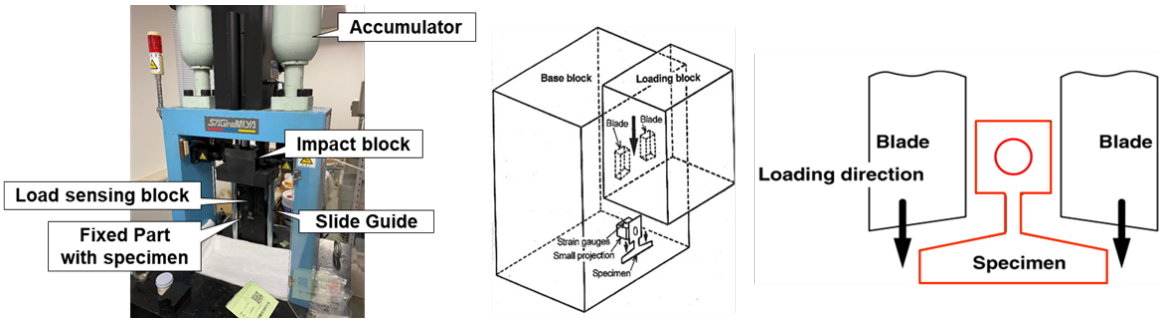


図 5-39　検力ブロック式高速度試験装置

表 5-22　高速引張試験の試験条件

ひずみ取得方法	ローディングブロックの変位を使用し取得
応力	ロードセルから得られた荷重を用いて算出
破断ひずみ	試験後の破断部の断面積を測定し、断面積の比から真破断応力を測定しひずみに換算
試験機	検力ブロック式試験装置（TS-2000）・鷺宮製作所
破断面の断面積測定	全ケースの試験片の破断面をマクロ撮影用カメラにて写真撮影し、断面写真より Photoshop などのソフトウェアを用いて断面積を測定
試験温度	室内雰囲気とし、試験時はおよそ温度 23 °C、湿度 50 %

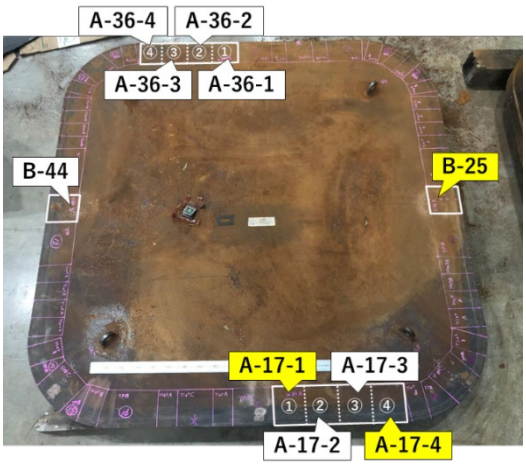
令和 5 年度の落下解析では、母材部及び溶接金属部（溶接線方向）の材料モデルを作成して解析モデルへの適用を試みる。そのため、以降は、今回実施した 4 種類の試験片 Type のうち、Type 1-A（母材部／溶接線方向）及び Type 1- B（溶接金属部／溶接線方向）について述べる。

試験結果を図 5-40、図 5-41 にそれぞれ示す。

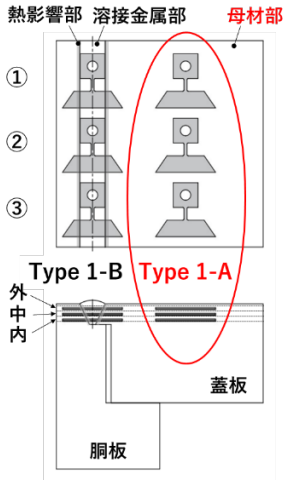
なお、Type 1-A の試験では、ブロック部材 A-17 及び B-25 の 2 つの部材の母材部から採取した試験片を使用し、Type 1- B の試験では、ブロック部材 A-17、A-36 及び B-25 の 3 つの部材の溶接金属部から採取した試験片を使用した。

図で示すように、今回の試験結果では、母材部に比べ溶接金属部でバラツキ大きく、とりわけ B-25 のブロック部材から採取した試験片の影響が大きいことが分かった。これは、前述の「実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価」において、過度な熱履歴を受けて材料の軟化が示唆された部位と合致することから（図 5-23）、材料強度の不均一性が顕著に現れたものと考えられる。

そこで、以降の材料モデルを作成するにあたり、試験片を採取したブロック部材により A、B の 2 種類の部材 Group に分け、それぞれ材料パラメータを算出したのち、どちらを適用するか検討することとした。

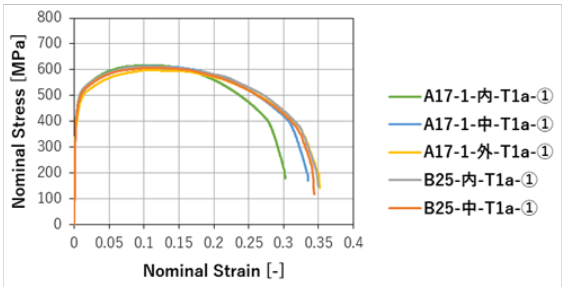


(a) 試験片採取位置

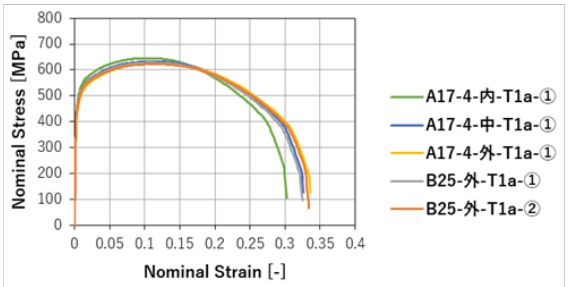


(b) 試験片を採取したブロック部材の位置

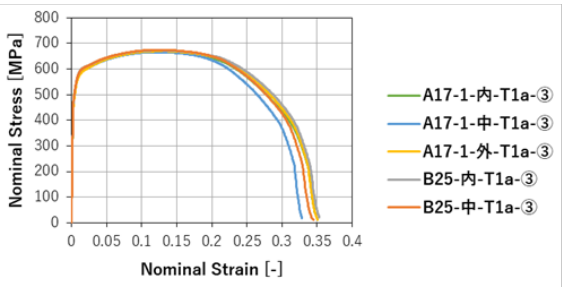
ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
0.01	A17-1-内-T1a-①	617.42	A	609.55
	A17-1-中-T1a-①	612.60		
	A17-1-外-T1a-①	598.61		
	B25-内-T1a-①	610.55	B	608.84
	B25-中-T1a-①	607.13		



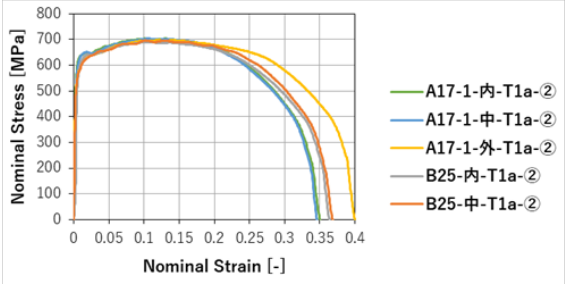
ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
1	A17-4-内-T1a-①	645.06	A	633.77
	A17-4-中-T1a-①	632.22		
	A17-4-外-T1a-①	624.03		
	B25-外-T1a-①	627.41	B	608.84
	B25-外-T1a-②	622.74		



ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
100	A17-1-内-T1a-③	666.04	A	667.03
	A17-1-中-T1a-③	665.66		
	A17-1-外-T1a-③	669.38		
	B25-内-T1a-③	672.27	B	673.47
	B25-中-T1a-③	674.66		

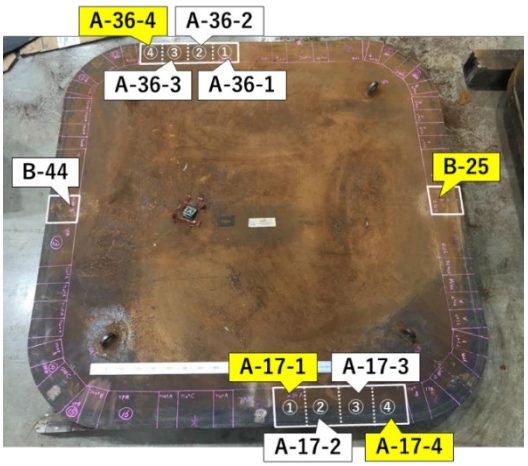


ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
800	A17-1-内-T1a-②	702.78	A	700.96
	A17-1-中-T1a-②	703.36		
	A17-1-外-T1a-②	696.75		
	B25-内-T1a-②	690.33	B	693.42
	B25-中-T1a-②	696.50		

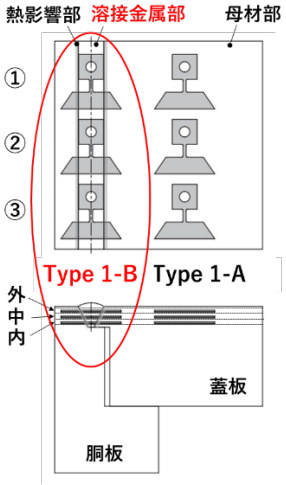


(d) 公称応力–公称ひずみ線図

図 5-40　Type 1-A（母材部／溶接線方向）の試験結果

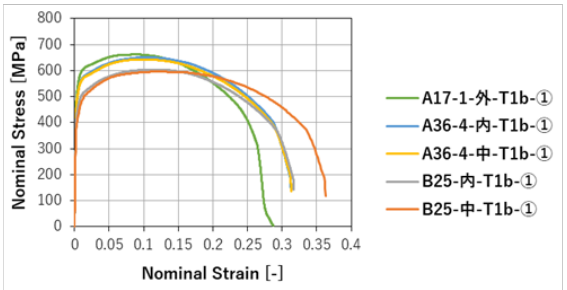


(a) 試験片採取位置

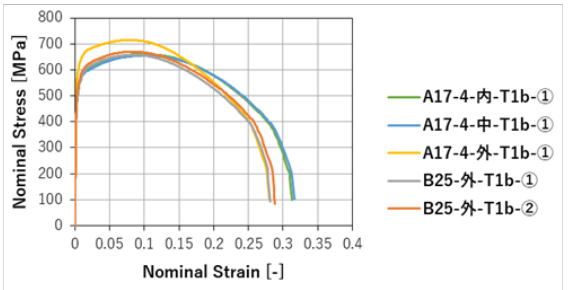


(b) 試験片を採取したブロック部材の位置

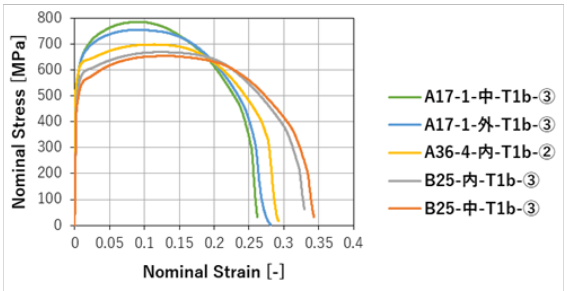
ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
0.01	A17-1-外-T1b-①	661.99	A	651.87
	A36-4-内-T1b-①	650.42		
	A36-4-中-T1b-①	643.19		
	B25-内-T1b-①	603.62	B	599.71
	B25-中-T1b-①	595.80		



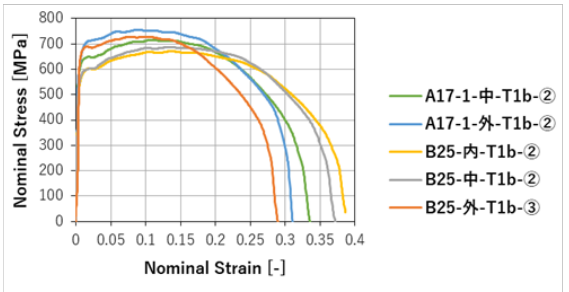
ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
1	A17-4-内-T1b-①	660.35	A	676.48
	A17-4-中-T1b-①	654.41		
	A17-4-外-T1b-①	714.66		
	B25-外-T1b-①	657.59	B	663.49
	B25-外-T1b-②	669.38		



ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
100	A17-1-中-T1b-③	784.25	A	745.37
	A17-1-外-T1b-③	754.13		
	A36-4-内-T1b-③	697.74		
	B25-内-T1b-③	667.92	B	660.68
	B25-中-T1b-③	653.45		



ひずみ速度 [/s]	試験片番号	引張強さ [MPa]	部材 Group	平均引張強さ [MPa]
800	A17-1-中-T1b-②	714.94	A	734.58
	A17-1-外-T1b-②	754.23		
	B25-内-T1b-②	670.58	B	695.04
	B25-中-T1b-②	686.61		
	B25-外-T1b-③	727.93		



(d) 公称応力−公称ひずみ線図

図 5-41　Type 1- B（溶接金属部／溶接線方向）の試験結果

(4) 材料モデルの作成

上記の高速材料試験の結果を用いて、ひずみ速度を考慮した T-M2009 モデルを作成した。

T-M 2009 モデルは、谷村らによって、鉄系、アルミ系、銅系、樹脂系といった各材料系における広範囲のひずみ速度及び真破断ひずみに至る全ひずみ域での動的引張特性の実測データを基に開発されたモデルで、材料系に属するあらゆる材料のひずみ速度感受性を精度よく再現できるという特徴があり、以下の形式で記述される。

$$\sigma = \sigma_s + \left\{\alpha \cdot (\varepsilon_p)^{m1} + \beta\right\} \cdot \left(1 - \frac{\sigma_s}{\sigma_{CR}}\right) \cdot \ln\left(\frac{\dot{\varepsilon_p}}{\dot{\varepsilon_{sp}}}\right) + B(\varepsilon_p, \sigma_s) \cdot \left(\frac{\dot{\varepsilon_p}}{\dot{\varepsilon_u}}\right)^{m2}$$

ここで、$B(\sigma_s) = B1 \cdot \sigma_s + B2$

σ ：流動応力
ε_p ：相当塑性ひずみ
$\dot{\varepsilon_p}$ ：相当塑性ひずみ速度
$\dot{\varepsilon_{sp}}$ ：準静的ひずみ速度（通常 10^{-2} / s）
σ_s ：準静的ひずみ速度時の静的応力
σ_{CR} ：単軸負荷における材料の限界強度
ここでは横弾性係数 G を用いて、$\sigma_{CR} = \sqrt{3}CR$, $\tau_{CR} = G/30$ で近似
$\alpha,\ \beta$ ：材料系固有の値
$m1,\ m2$ ：材料系固有の値
B ：準静的応力及びひずみ依存した材料系特有の関数（粘性項を表現）
$\dot{\varepsilon_u}$ ：単位ひずみ速度（ = 1 / s）

T-M2009 モデルのパラメータを同定するにあたり、各ひずみ速度において部材 Group 毎に平均化処理を行い、その部材 Group の代表データとしてパラメータを算出した。

算出した T-M2009 パラメータを**表 5-23** に示す。

表 5-23 T-M2009 パラメータ

部材／方向	母材／溶接線方向		溶接金属部／溶接線方向	
試験片 Type	Type 1-A		Type 1-B	
部材 Group	Group-A	Group-B	Group-A	Group-B
α	-18.502	-21.600	-11.762	-5.035
β	11.152	9.046	9.680	10.366
$m1$	1.0	1.0	1.0	1.0
σ_{CR}	4663	4663	4663	4663
$\dot{\varepsilon_{ps}}$	0.01	0.01	0.01	0.01
$B1$	0.0	0.0	0.0	0.0
$B2$	0.0	0.0	0.0	0.0
$m2$	1.0	1.0	1.0	1.0
0.2%耐力 [MPa]	431.342	442.648	519.059	428.726
真破断ひずみ	1.428	1.534	1.396	1.432

前述のように、令和 5 年度の落下解析では、母材部（溶接線方向）と溶接金属部（溶接線方向）の材料モデルを適用する。そのため、**表 5-23** に示す Type1-A 及び Type1-B の T-M2009 パラメータのうち、それぞれ Group-A と Group-B のどちらの部材 Group を適用するか検討した。

ここで、「実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価」で実施した蓋溶接部から採取した試験片による静的引張試験結果（**表 5-17**）を参照すると、溶接線直交方向の試験片は全て母材部で破断しており、Type1-A の物性値を検討する際の参考になる。**表 5-17** の溶接線直交方向の静的引張試験結果では、0.2 %耐力の最小値が 404 MPa であることから、**表 5-23** の Group-B では過剰に見積もることになるため Group-A を適用する。

同様に、Type1-B は、溶接線方向の静的引張試験結果が参考になる。静的引張試験結果では、母材部より溶接金属部の方が 0.2 %耐力が高い傾向を示していることから、**表 5-23** の Group-B を採用した場合、母材部より溶接部の方が 0.2 %耐力が低いことになるため、Type1-B についても Group-A を適用する。

(5) 高速引張試験の再現解析による検証

高速引張試験結果から算出した T-M2009 モデルの材料パラメータを検証するため、ひずみ速度 0.01 [1/s] 及び 800 [1/s] の水準に対し高速引張試験の再現解析を実施した。再現解析のケースを**表 5-24** に、解析モデルを**図 5-42** に示す。

境界条件は、テストピースのピン穴の周囲の上半分の節点を完全拘束し、テストピースの肩部の節点の鉛直方向に一定の強制速度を与えることで高速引張試験を模擬した。

解析に使用した材料物性値は、密度 7.86 E-9 ton/mm^3、弾性率 2.10 E+5 MPa、ポアソン比 0.28 である。

表 5-24 再現解析のケース

解析ケース	1	2	3	4
部位／方向	母材部／溶接線方向		溶接金属部／溶接線方向	
試験片 Type	Type 1-A		Type 1-B	
部材 Group	Group-A		Group-A	
ひずみ速度 [1/s]	0.01	800	0.01	800

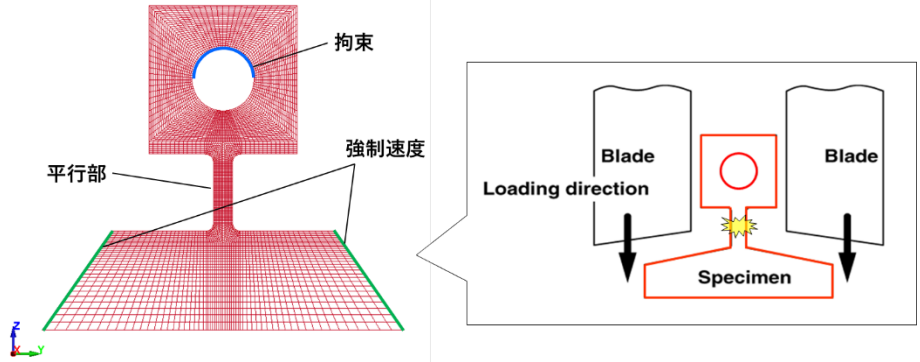


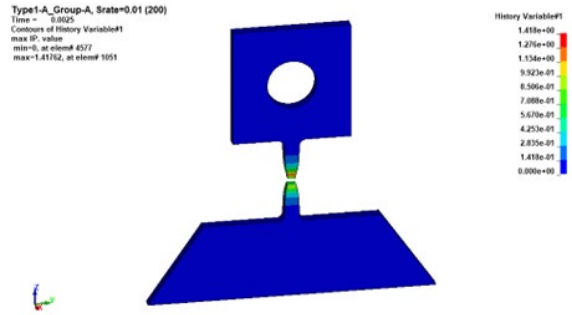
図 5-42 再現解析の解析モデル

Type 1-A／Group-A の再現解析の結果を**図 5-43** に、Type 1-B／Group-A の再現解析の結果を**図 5-44** にそれぞれ示す。

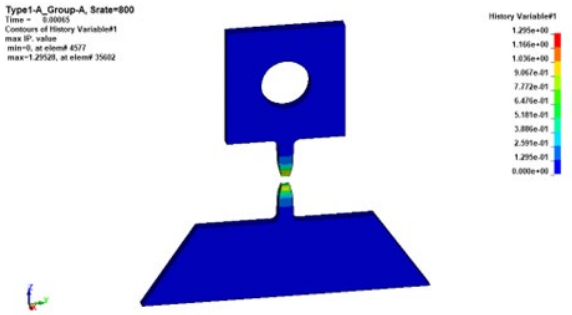
どちらの再現解析においても、試験片の平行部の中央付近でネッキングが生じ、試験で得られた破断ひずみに到達したのち破断しており、高速引張試験を精度良く再現できたと言える。破断時の相当塑性ひずみの分布を図中に示す。

公称応力－公称ひずみ線図を見ると、高速引張試験の結果（Test）と再現解析の結果（Simulation）は、最大応力点（引張強さ点）までは良く一致しているが、ネッキングが発生する最大応力点以降は、徐々に乖離は大きくなっている。これは、試験で得られた応力－ひずみ曲線がネッキング発生以降の応力状態が三軸応力状態となっていることに起因するため、今後、より正確な再現を望む場合には、三軸応力状態から単軸応力状態への補正が必要である。

また、真応力－真ひずみ線図における Simulation の曲線は、平行部中央の要素におけるミーゼスの相当応力－相当塑性ひずみ線図を示したもので、高速引張試験で得た応力－ひずみ曲線（Quasi-Static）と重ね合わせると、準静的であるひずみ速度 0.01 [1/s] では完全に一致し、検証計算が正しく行われたことがわかる。一方、高速域であるひずみ速度 800 [1/s] では若干のズレは生じているものの、これは平行部中央の要素に生じたひずみ速度に従い上昇したためであり、T-M2009 モデルとしては正しく機能していることから、概ね一致していると見做せる。

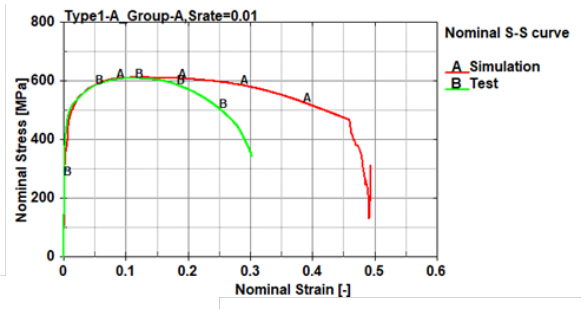


ひずみ速度=0.01 [1/s]

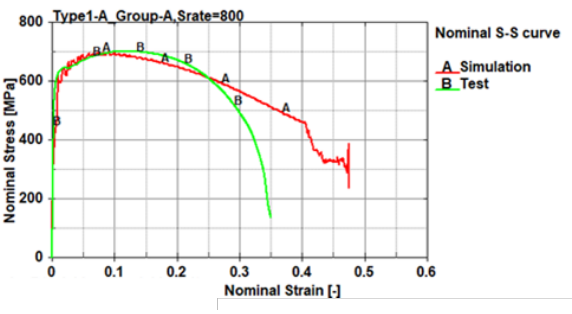


ひずみ速度=800 [1/s]

(a) 破断時における相当塑性ひずみの分布

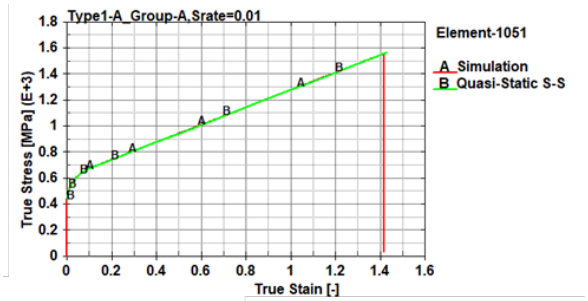


ひずみ速度=0.01 [1/s]

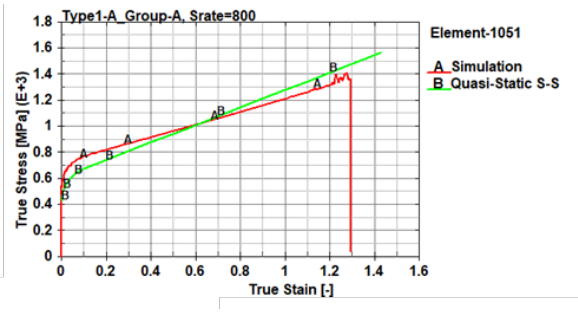


ひずみ速度=800 [1/s]

(b) 公称応力－公称ひずみ線図



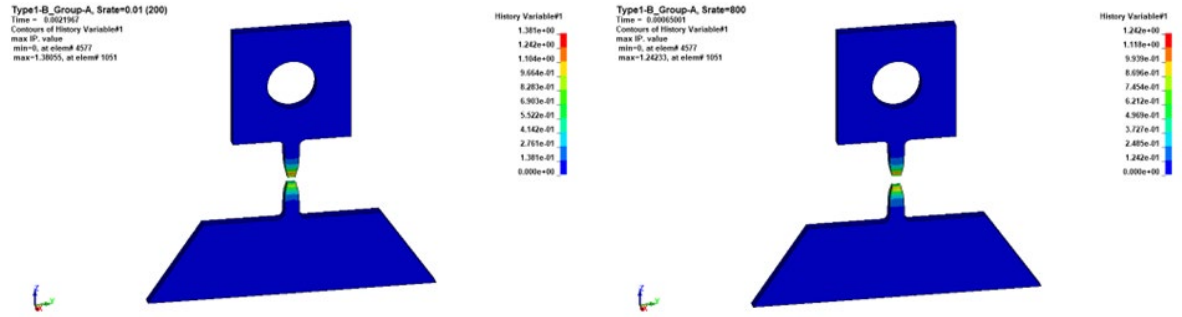
ひずみ速度=0.01 [1/s]



ひずみ速度=800 [1/s]

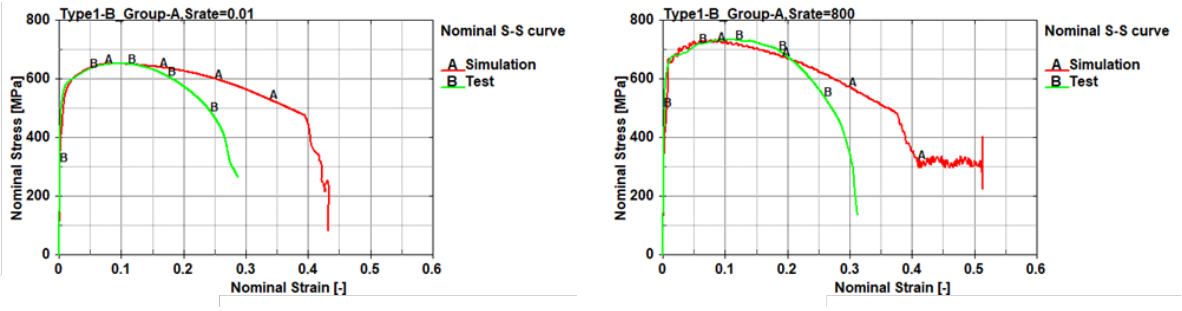
(c) 真応力－真ひずみ線図

図 5-43　Type1-A／Group-A の再現解析結果



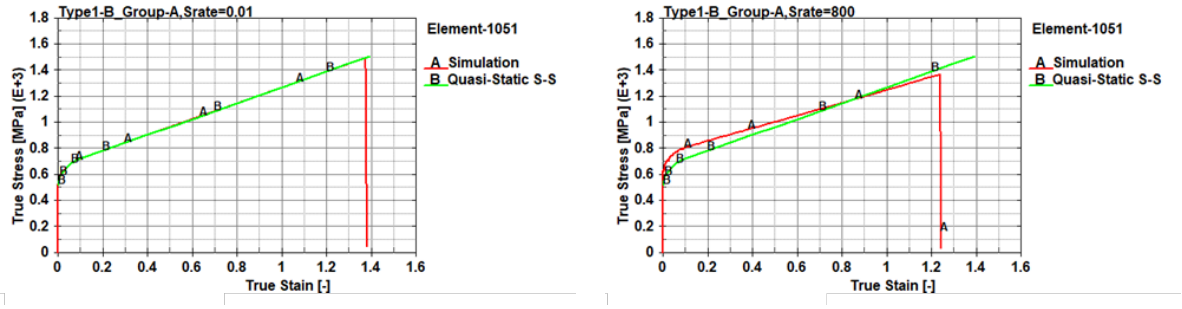
ひずみ速度=0.01 [1/s]　　ひずみ速度=800 [1/s]

(a) 破断時の変形図（相当塑性ひずみコンター図）



ひずみ速度=0.01 [1/s]　　ひずみ速度=800 [1/s]

(b) 公称応力－公称ひずみ線図



ひずみ速度=0.01 [1/s]　　ひずみ速度=800 [1/s]

(c) 真応力－真ひずみ線図

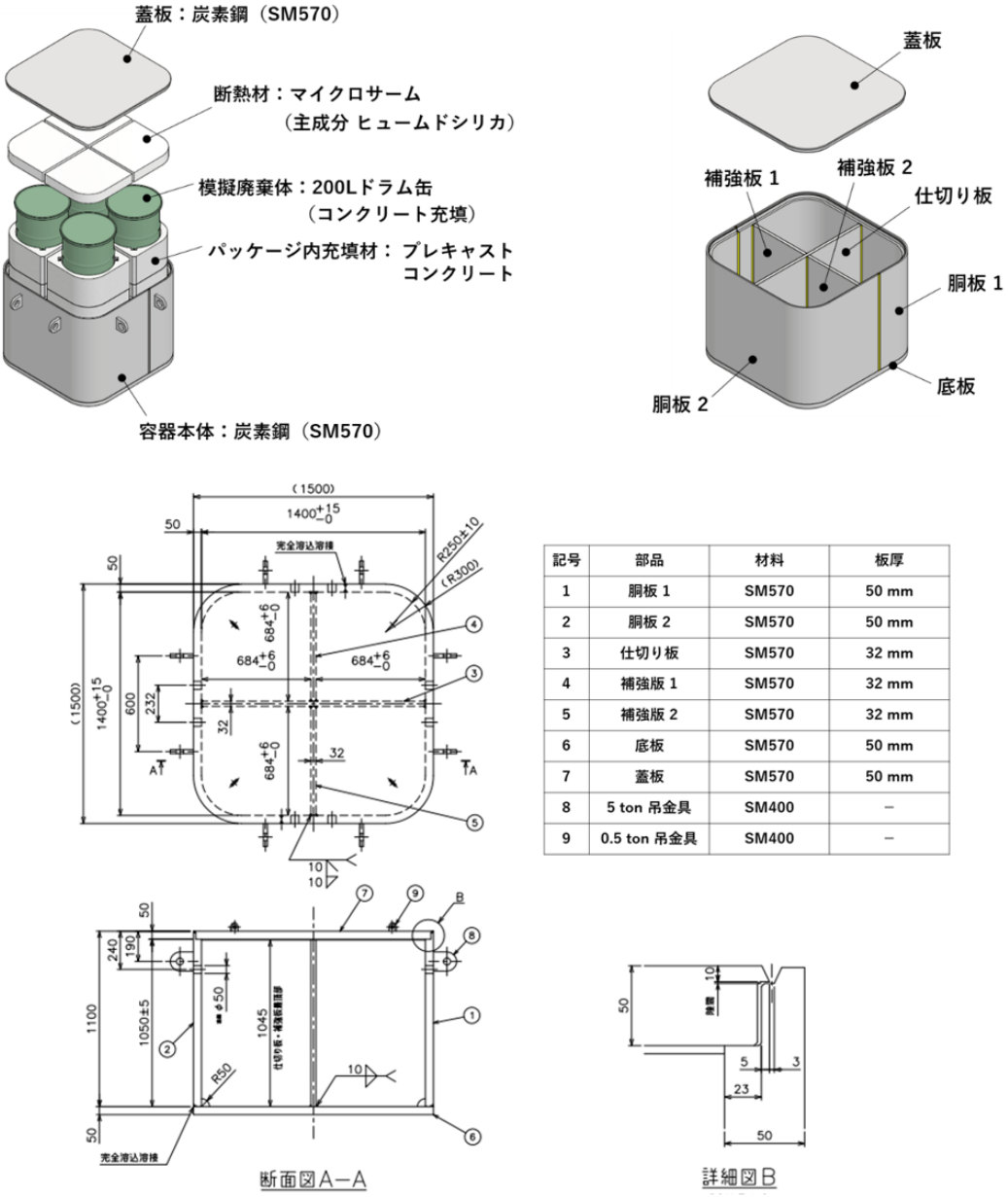
図 5-44　Type1-B／Group-A の再現解析結果

(6)　角型廃棄体パッケージの落下解析

作成した T-M2009 材料モデルを使用し、角型廃棄体パッケージの落下解析を実施した。解析は汎用有限要素法ソフトウェア ANSYS LS-DYNA を使用した。

1)解析モデル

解析モデルは、**図 5-45** に示す令和 4 年度に製作した実規模廃棄体パッケージを対象に作成した。



記号	部品	材料	板厚
1	胴板 1	SM570	50 mm
2	胴板 2	SM570	50 mm
3	仕切り板	SM570	32 mm
4	補強版 1	SM570	32 mm
5	補強版 2	SM570	32 mm
6	底板	SM570	50 mm
7	蓋板	SM570	50 mm
8	5 ton 吊金具	SM400	–
9	0.5 ton 吊金具	SM400	–

図 5-45　解析の対象とする廃棄体パッケージ

モデル化の対象となる構成部品を**表 5-25** に示す。

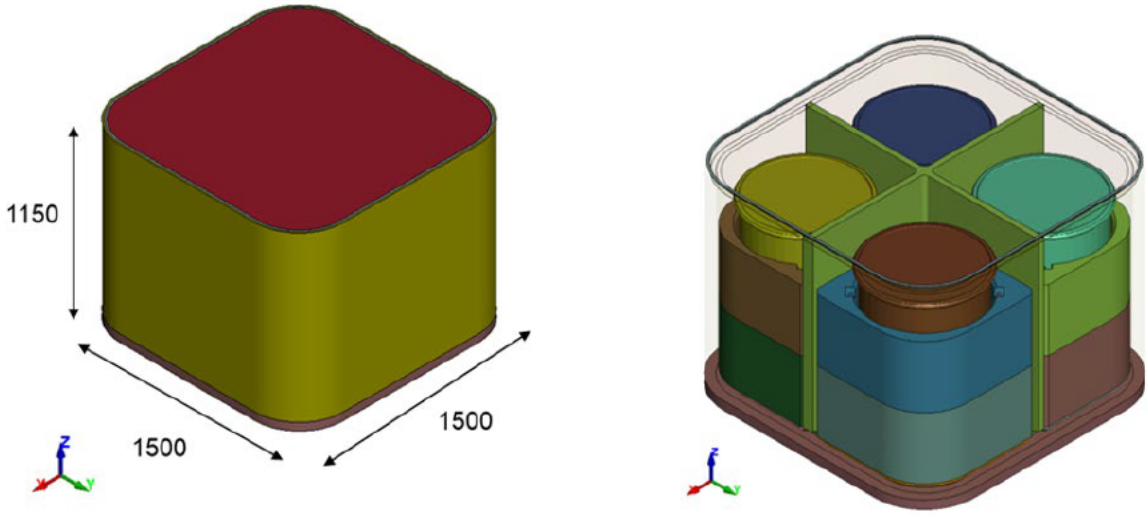
なお、実規模廃棄体パッケージに使用した断熱材（マイクロサーム）は、無垢の状態では非常

に脆い材質であるが、材料モデルを弾性体として定義したところ、落下時にクッションのような挙動を呈したことから、別途、材料モデルを検討する必要がある。よって、令和 5 年度ではモデル化の対象外とした。

表 5-25　モデル化の対象となる構成部品

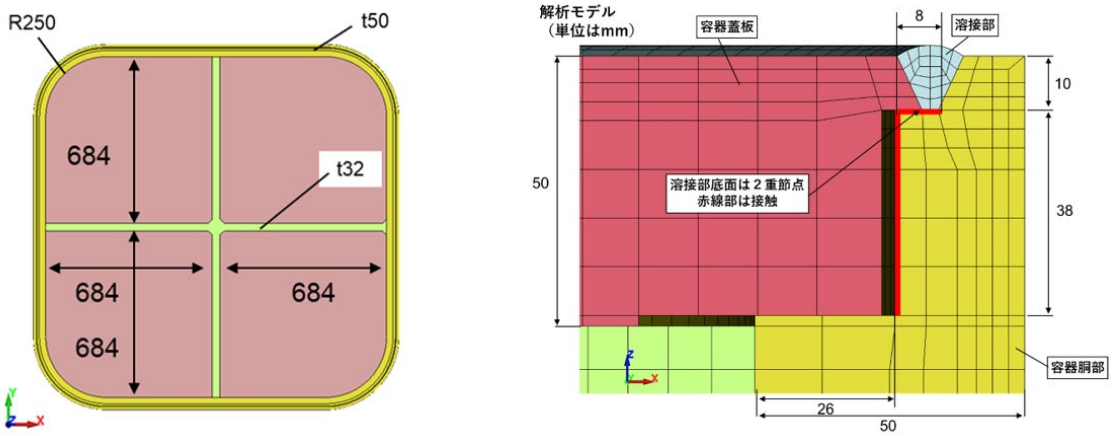
No	区分	部品	材料	材料モデル	備考
1	容器	蓋板	SM570	T-M モデル	材料試験よりパラメータ算出
2		容器本体	SM570	T-M モデル	材料試験よりパラメータ算出
3		蓋溶接部	溶接材	T-M モデル	材料試験よりパラメータ算出
4	内容物	~~断熱材~~	~~マイクロサーム~~	~~弾性体~~	~~圧壊を考慮する~~
5		パッケージ内充填材	コンクリート	コンクリート材	ひび割れは考慮しない
6		締結用ボルト・ナット・座金	炭素鋼	弾塑性体	ひずみ速度依存性は考慮しない
7		模擬廃棄体　200L ドラム缶	炭素鋼	T-M モデル	既存の共通パラメータを使用
8		模擬廃棄体　コンクリート	コンクリート	コンクリート材	ひび割れは考慮しない

作成した解析モデルを図 5-46 から図 5-50 に示す。



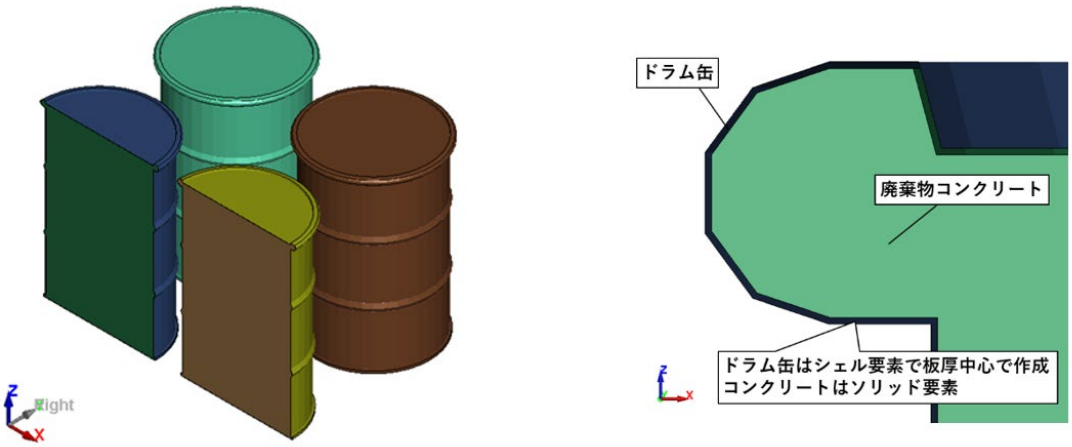
(a) 全体俯瞰図　　(b) 容器蓋と外周を透過表示

図 5-46　廃棄体パッケージモデルの全体図



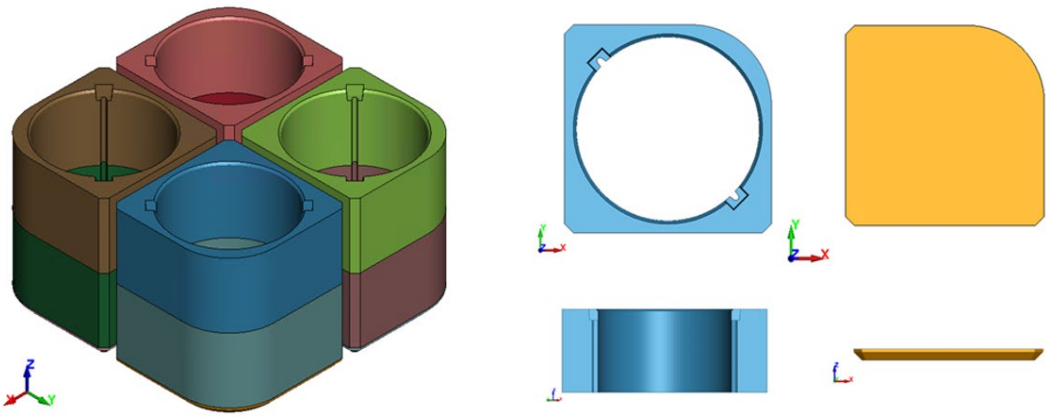
(a) 容器本体　　(b) 蓋溶接部断面

図 5-47　廃棄体パッケージ容器本体と溶接部断面



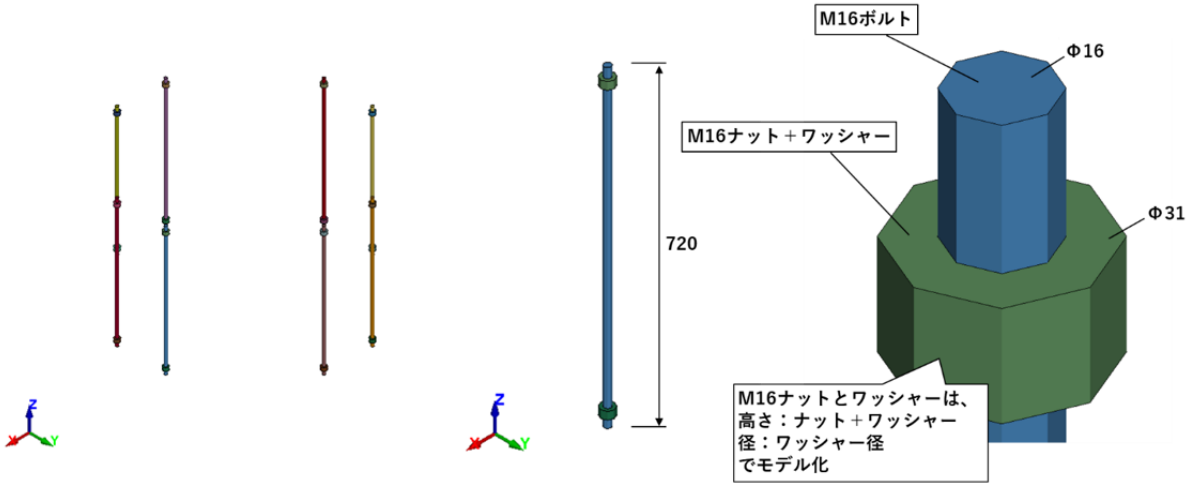
(a) 200L ドラム缶　　(b) ドラム缶詳細

図 5-48　模擬廃棄体パッケージ容器本体と溶接部断面



(a) パッケージ内充填材全体図　　(b) プレキャストによる各部品

図 5-49　廃棄体パッケージ内充填材



(a) 全体図　　(b) 締結部詳細

図 5-50　締結用ボルト・ナット

2)　材料構成則及び材料物性

解析に使用した材料構成則及び材料物性を**表 5-26** に示す。

表 5-26　解析に使用した材料構成則及び材料物性

No	区分	部材名	個数	材質	弾性係数	密度	ポアソン比	降伏応力 圧縮強度	質量 (1個当たり)	備考
					[MPa]	[ton/mm³]	–	[MPa]	[kg]	
1	容器	蓋板	1	SM570	210000	8.554E-09	0.28	431.342	866.0	Type 1-A/Group-Aを使用
2		容器本体	1	SM570	210000	8.554E-09	0.28	431.342	2,445	
3		蓋溶接部	1	溶接材	210000	8.554E-09	0.28	519.059	4.27	Type 1-B/Group-Aを使用
4	内容物	パッケージ内充填材 上部	4	コンクリート	–	2.288E-09	0.2	43	134.3	内部充填材合計： 305.8 kg （1個当たり）
5		パッケージ内充填材 下部	4	コンクリート	–	2.296E-09	0.2	43	134.8	
6		パッケージ内充填材 底板部	4	コンクリート	–	2.235E-09	0.2	43	36.7	
7		M16　締結用ボルト	8	SWCH	210000	7.860E-09	0.28	320	1.02	
8		M16　座金+ナット上部	8	SWCH	210000	7.860E-09	0.28	320	0.07	
9		M16　座金+ナット下部	8	SWCH	210000	7.860E-09	0.28	320	0.07	
10		模擬廃棄体 ドラム缶	4	SPCC	210000	8.319E-09	0.28	334	29.50	
11		模擬廃棄体 コンクリート	4	コンクリート	–	1.829E-09	0.2	30	401.0	
合計質量									8,000	実測は 7,730 kg

廃棄体パッケージの蓋板、容器本体及び蓋溶接部については、**表 5-27** に示す T-M2009 パラメータを適用する。

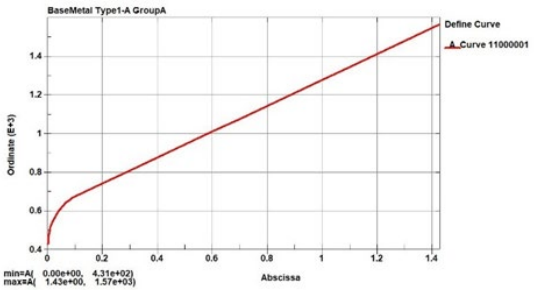
図 5-51 に各材料の真応力-相当塑性ひずみ関係を示す。模擬廃棄体のドラム缶及びボルト類は、広く一般的に使用される多直線近似による等方弾塑性体モデルを使用した。

また、パッケージ内充填材のプレキャストコンクリート及び模擬廃棄体の内容物であるコンクリートについては、簡易的な入力が可能で、かつ、ひずみ速度依存性を考慮できる The Karagozian & Case Concrete Model - Release III を使用した。これは、密度、一軸圧縮強度、長さ及び応力の単位変換係数のみを入力することで、必要な状態方程式を内部で計算し使用することができる。

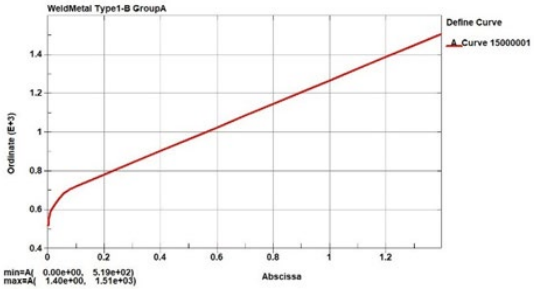
解析モデルの全体質量は、実規模廃棄体パッケージの実測値 7,730 kg に対し、8,000 kg になるように各構成部品の密度を調整した。

表 5-27　廃棄体パッケージの蓋板、容器本体及び蓋溶接部に適用する T-M パラメータ

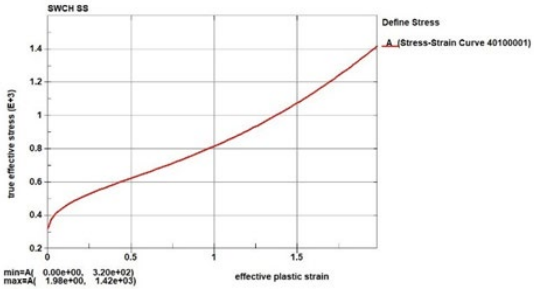
T-M2009 パラメータ	廃棄体パッケージの蓋板、容器本体	蓋溶接部
	Type 1-A Group-A	Type 1-B Group-A
α	-18.502	-11.762
β	11.152	9.680
$m1$	1.0	1.0
σ_{CR}	4663	4663
$\dot{\varepsilon_{ps}}$	0.01	0.01
$B1$	0.0	0.0
$B2$	0.0	0.0
$m2$	1.0	1.0
降伏応力（0.2%耐力）[MPa]	431.342	519.059
真破断ひずみ	1.428	1.396



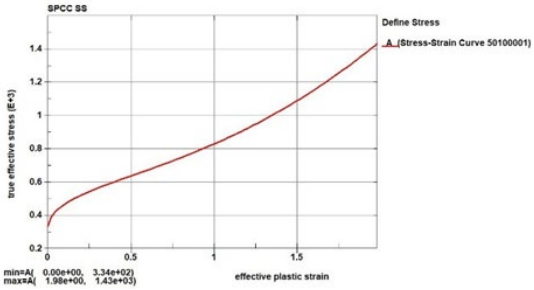
(a) 廃棄体パッケージ蓋板・容器本体



(b) 蓋溶接部



(c) ボルト、ワッシャ、ナット：SWCH



(d) ドラム缶：SPCC

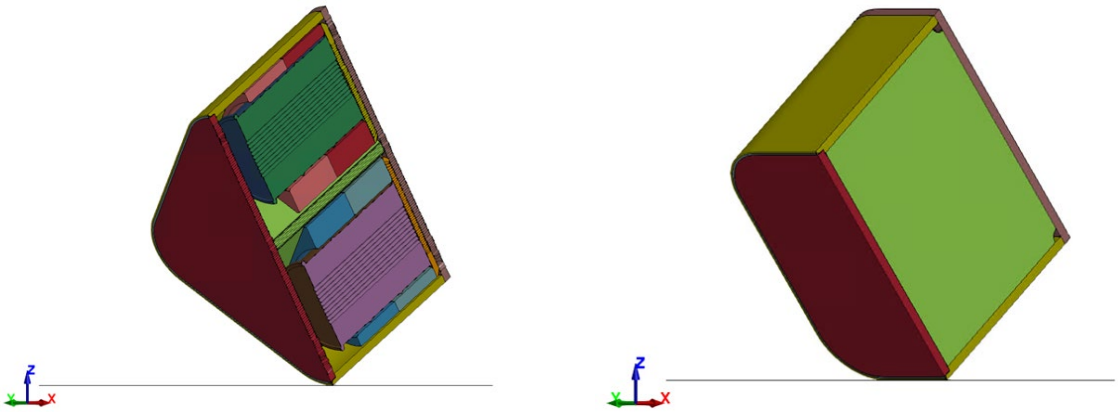
図 5-51　各材料の真応力-相当塑性ひずみ関係

3)　解析条件

落下姿勢は、**図 5-52** に示すように、廃棄体パッケージの蓋と廃棄体パッケージの重心位置が直線となるように姿勢を制御した状態で、蓋側角部コーナーから落下する場合と、蓋側辺部から

落下する場合の 2 ケースを設定した。なお、衝突する床は剛体床とし、鋼材同士および容器と剛体床の摩擦係数は 0.2、鋼材とコンクリートの摩擦係数は 0.5 とした。

落下高さについては、暫定的に落下高さの下限を廃棄体パッケージ 1 段分で 2 m とし、上限を最大 4 段分と仮定し 8 m とした。



(a) 蓋側角部コーナー落下　　(b) 蓋側辺部落下

図 5-52　解析ケース

4)　解析結果の検証及び妥当性の確認

本来、解析結果の検証には実試験との整合が必要であるが、それは今後の課題として、ここでは、以下の項目を確認することで解析結果を検証した。

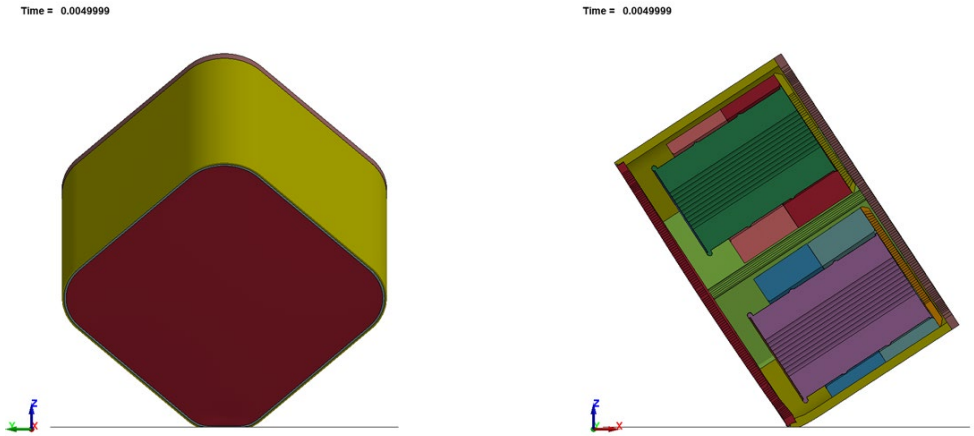
・解析結果のモデルに異常な変形がないこと
・容器全体と剛体床との接触力に異常がないこと
・エネルギー収支に問題がないこと

①　蓋角部コーナー落下

図 5-53 に最大荷重発生時（0.005 s）の解析モデル全体の正面視及び ZX 断面を、**図 5-54** に蓋溶接部の拡大図を示す。廃棄体パッケージが剛体床と接触し最大荷重が発生した時点での全体挙動については、とくに要素の異常な変形等は見受けられない。

図 5-55 に示すエネルギー収支からは、最大荷重発生以降は運動エネルギー（Kinetic Energy）が消散し、内部エネルギー（Internal Energy）やアワーグラスエネルギー（Hourglass Energy）などの他の形態にエネルギーが変換されていることが分かる。また、全エネルギー（Total Energy）が一定であることから、エネルギーの変換は適切に行われ、最大荷重発生時以降のアワーグラスエネルギーとスライディングエネルギーの増加も比較的小さいことから、解析結果に大きな影響はないと考えられる。

アワーグラスエネルギーについては、一般に、落下解析のような動的陽解法の解析では、計算コストを抑制するために低減積分要素が使用されるが、この場合、要素内の積分点が 1 つとなることで、大変形や複雑な接触が発生したときに、要素が変形してもひずみエネルギーがゼロと計算されるような非物理的な変形モードが現れる可能性がある（このときの変形した形状が砂時計の形に似ていることから、アワーグラスと呼ばれる）。この非物理的な変形モードが発生したときに、数値的な安定性を保つためにアワーグラス制御アルゴリズムが動作するが、その過程でアワーグラスエネルギーが上昇する。



(a) 全体　正面視　　(a) 全体　ZX 断面

図 5-53　蓋側角部コーナー落下の最大荷重発生時（0.005 s）の全体挙動

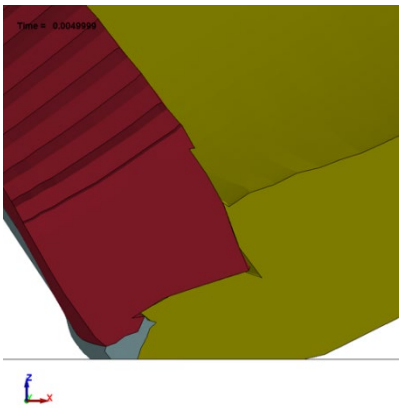


図 5-54　蓋側角部コーナー落下の最大荷重発生時（0.005 s）の蓋溶接部

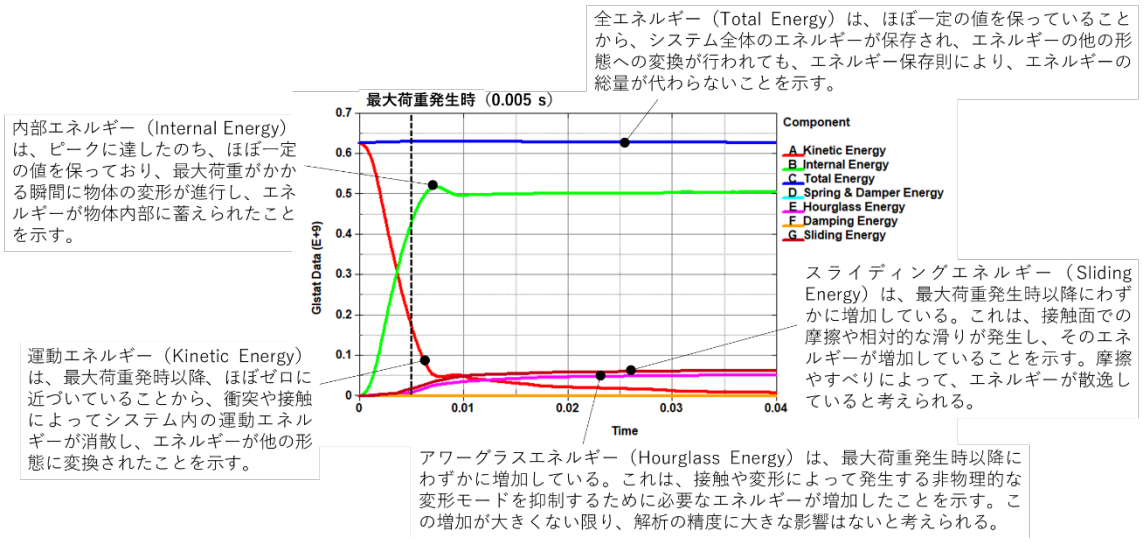
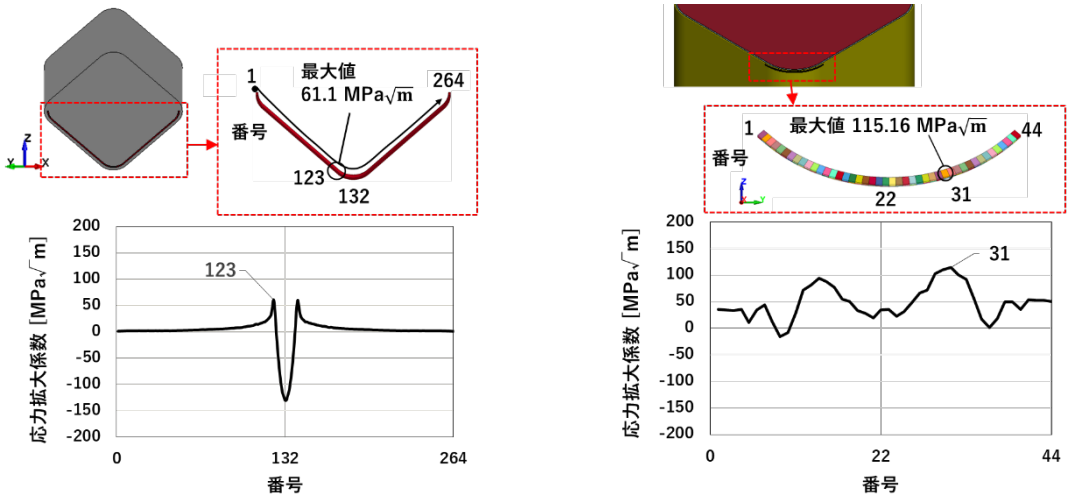


図 5-55　蓋側角部コーナー落下時のエネルギー収支

次に、解析結果の妥当性を確認するため、先行事業で実施したコーナー落下の試解析の結果を用いて、応力拡大係数の分布を比較した。

図 5-56 に示すように、先行事業の解析結果で算出された応力拡大係数の最大値は 61.1 MPa√m であるのに対し、今回の結果では 115.16 MPa√m と応力拡大係数の最大値を比較すると大きな差があるが、この差は、廃棄体パッケージ蓋部の構造的な差異、つまり、今回の解析モデルは溶接部が蓋板上面から施工されているのに対し、先行事業の解析モデルでは、容器の胴部からの溶接施工となっていることに加え、溶接厚さ及びコーナーの R 寸法が異なることに起因する。

しかし、応力拡大係数の最大となる位置は、先行事業での結果と同様に今回の解析モデルでも角部から少し離れた位置で発生していることから、解析結果は妥当であると判断した。



(a) 先行事業の結果　　(b) 今回の結果

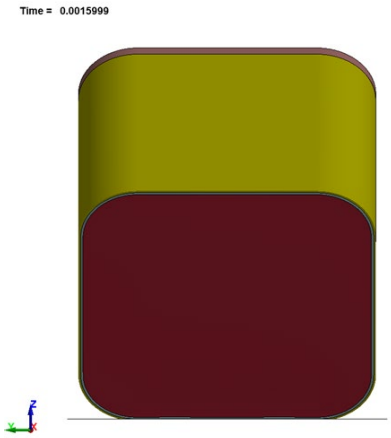
図 5-56　先行事業の解析結果との比較

②　蓋側辺部落下

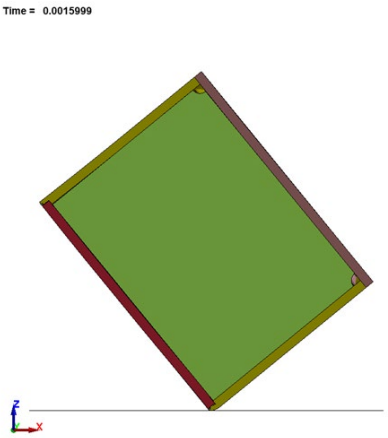
廃棄体パッケージの蓋側辺部落下の解析結果の妥当性については、先行事業での辺部コーナー落下とは落下姿勢が異なるため、上記の蓋側角部コーナー落下のように 1 対 1 の比較はできないが、蓋側角部コーナー落下の解析結果において、既に解析モデル自体の妥当性の確認はできている。従って、蓋側辺部落下の解析モデルについても妥当性は担保されていると判断した。

図 5-57 に最大荷重発生時（0.0016 s）の解析モデル全体の正面視及び ZX 断面を、**図 5-58** に蓋溶接部の拡大図を示す。また、**図 5-59** にエネルギー収支を示す。廃棄体パッケージが剛体床と接触し最大荷重が発生した時点での全体挙動については、要素の異常な変形は見受けられない。

エネルギー収支については、最大荷重発生時以降のエネルギー収支は全体として安定していると言え、運動エネルギー（Kinetic Energy）が急減し、内部エネルギー（Internal Energy）が増加したことから、運動エネルギーが他の形態に変換されたことがわかる。また、全エネルギー（Total Energy）もほぼ一定であることから、エネルギーの散逸が少なく、解析が適切に実施されたことがわかる。アワーグラスエネルギーの増加については、これは非物理的な変形モードの抑制に起因するものであり、解析結果に大きな影響を与えるものではないと判断できる。



(a) 全体　正面視



(a) 全体　ZX 断面

図 5-57　蓋側辺部落下の最大荷重発生時（0.0016 s）の全体挙動

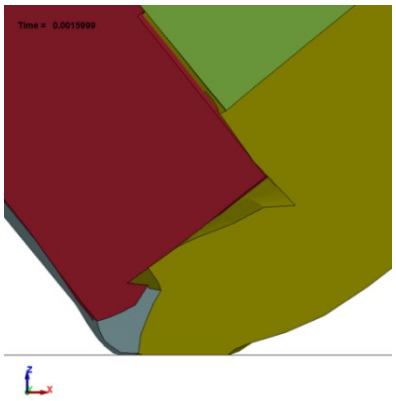


図 5-58　蓋側辺部落下の最大荷重発生時（0.0016 s）の蓋溶接部

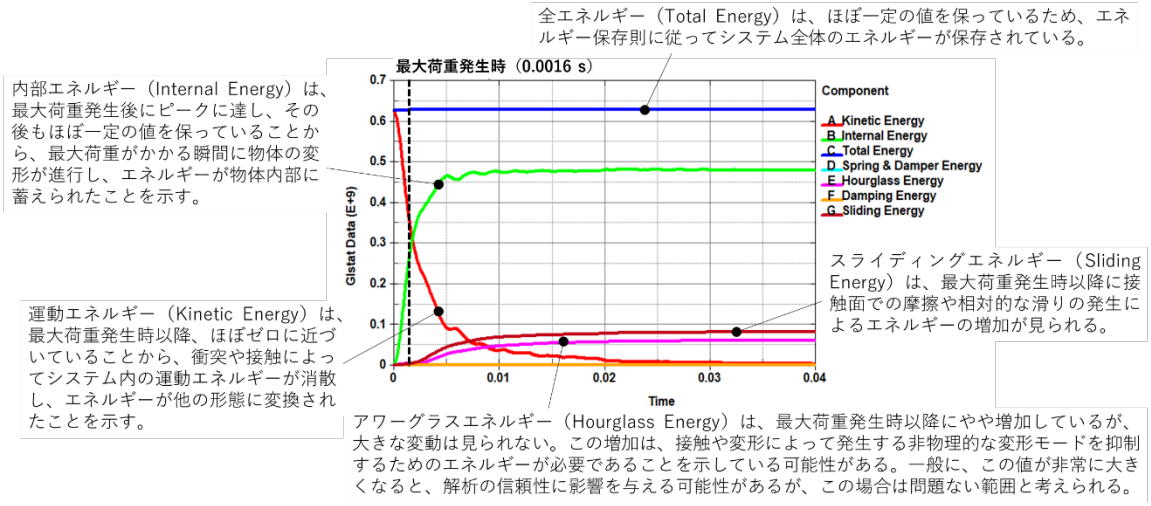


図 5-59　蓋側辺部落下時のエネルギー収支

5)　健全性評価

落下解析による廃棄体パッケージ溶接部の健全性については、延性破壊及び脆性破壊に対してそれぞれ評価した。

延性破壊では、解析結果から直接算出される溶接部近傍の相当塑性ひずみ及び応力三軸度（Stress Triaxiality）から評価を行った。また。脆性破壊では、蓋板と胴板の接触部及び溶接部底部が未溶着と仮定し、応力拡大係数を算出した。

①　延性破壊評価

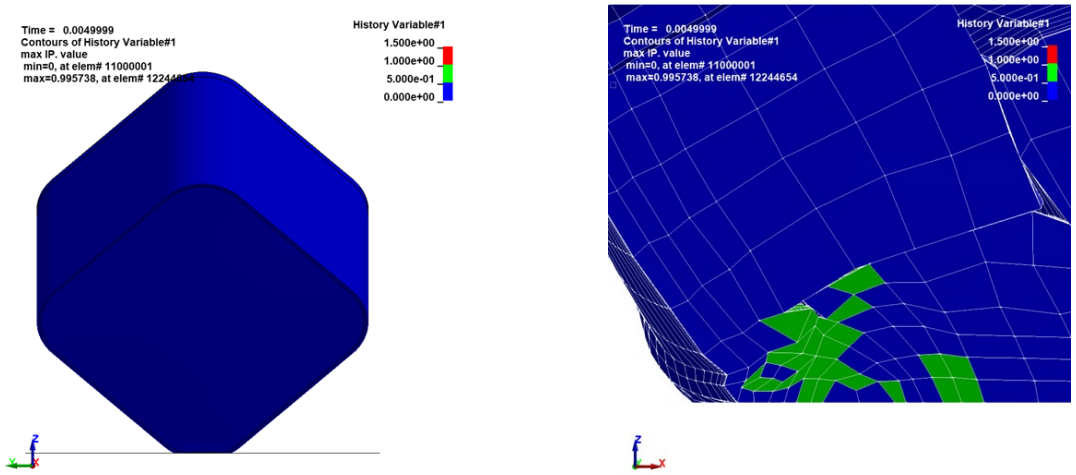
延性破壊では、解析結果より求められる相当塑性ひずみ及び応力三軸度の状態から、延性破壊の有無を判断した。応力三軸度は以下の式から計算される。

$$\eta = \frac{\sigma_m}{\bar{\sigma}} = \frac{\frac{1}{3}(\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)}{\sqrt{\frac{1}{2}\{(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2\}}}$$

ここで、

η　　：応力三軸度
σ_m　　：静水圧応力（平均応）
$\bar{\sigma}$　　：ミーゼス相当応力

図 5-60 に最大荷重発生時（t=0.005s）の蓋角部コーナー落下の解析モデル全体及び容器蓋角部 ZX 断面の相当塑性ひずみを、**図 5-61** に容器蓋角部 ZX 断面の応力三軸度を示す。蓋角部コーナー落下において、相当塑性ひずみは最大で容器胴部の 0.996 となっており、高速引張試験より得られた、真破断ひずみは母材 1.428、溶接部 1.396 であり、母材の真破断ひずみとの比は 0.70 となる。また、応力三軸度は、容器の金属部は 0 以下の負の値となっており、圧縮側の状態が支配的であるため、延性破壊の可能性は低いと考えられる。



(a) 全体　　(b) 容器蓋角部 ZX 断面

図 5-60　蓋側角部コーナー落下の最大荷重発生時（0.005s）の相当塑性ひずみ

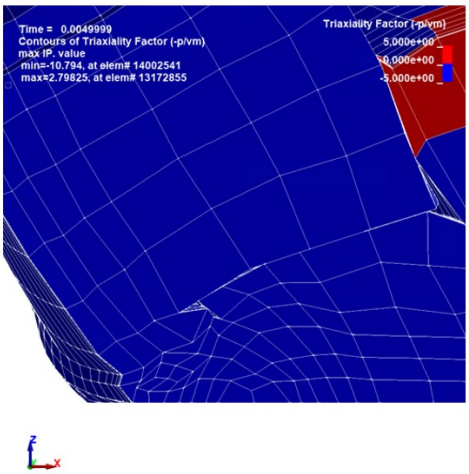
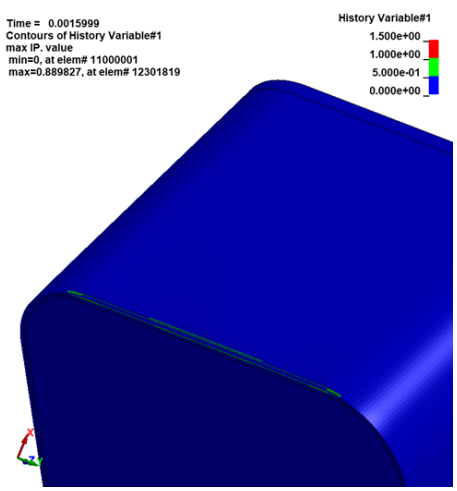


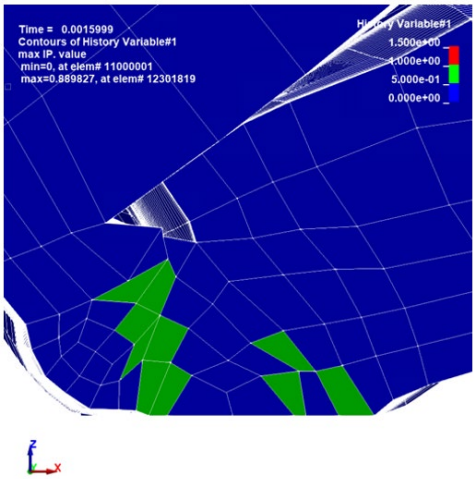
図 5-61　蓋側角部コーナー落下の最大荷重発生時（0.005s）の応力三軸度

次に、図 5-62 に最大荷重発生（t=0.0016s）の蓋側辺部落下の解析モデル全体及び容器蓋角部 ZX 断面の相当塑性ひずみを、図 5-63 に容器蓋角部 ZX 断面の応力三軸度を示す。

蓋側辺部落下においても、相当塑性ひずみは、蓋角部コーナー落下と同様に最大で容器胴部の 0.89 となっており、母材の真破断ひずみとの比は 0.62 となる。また応力三軸度は、引張側を示す部位も見られるものの、圧倒的に圧縮側が支配的であり、蓋側角部コーナー落下と同様に、延性破壊の発生は低いと考えられる。



(a) 全体



(b) 容器蓋角部 ZX 断面

図 5-62　蓋側辺部落下の最大荷重発生時（0.0016s）の相当塑性ひずみ

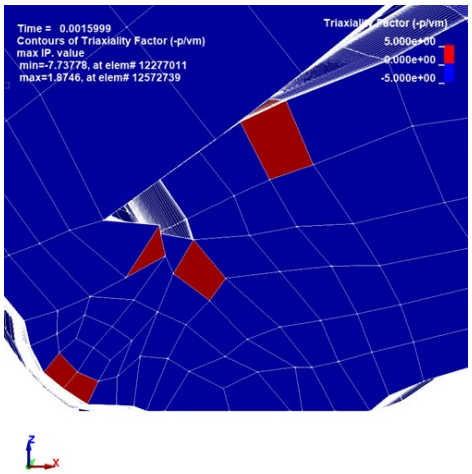


図 5-63　蓋側辺部落下の最大荷重発生時（0.0016s）の応力三軸度

② 脆性破壊評価

脆性破壊評価は、図 5-64 に示すそれぞれの解析モデルにおける評価要素に対して、応力拡大係数ＫＩ(MPa·√m）を算出した。

脆性破壊の評価である推定亀裂進展方向を図 5-65 に示す。今回の解析モデルでは、溶接部の初層部、すなわち、溶接部の底部と容器胴板部が未溶着であるとし、溶接底部から容器胴板部の側面方向に亀裂が進展すると仮定した。

まず、亀裂のない解析モデルを用いた落下解析により、廃棄体パッケージ容器と剛体床と接触力が 0 になるまでの時刻の単位断面あたりの膜応力 σ_m 、曲げ応力 σ_b を亀裂進展方向と直交方向の応力から算出する。その後、想定亀裂深さから、各応力に対する応力拡大係数ＫＩｍ、ＫＩｂを求め、重ね合わせの原理より、応力拡大係数ＫＩを求めた。膜応力 σ_m 及び曲げ応力 σ_b から、それぞれの応力拡大係数ＫＩｍ、ＫＩｂを、以下の推定式を用いて算出した。

$$K_{Im} = \sigma_m \sqrt{\pi a} \cdot F(\xi)$$
$$F(\xi) \cong 1.12 - 0.231\xi + 10.55\xi^2 - 21.72\xi^3 + 30.39\xi^4$$
$$\xi = a/W$$

ここで、

a　　：想定亀裂長さ=8mm
F　　：補正係数
W　　：板厚＝24mm

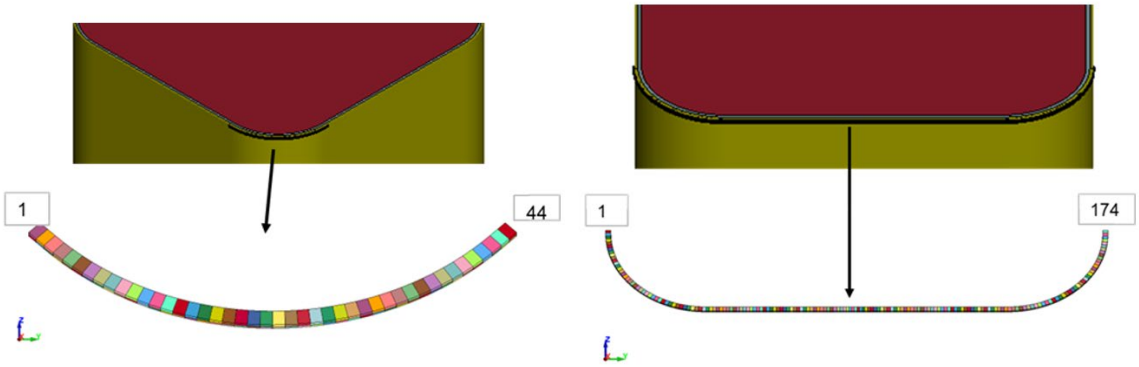
$$K_{Ib} = \sigma_b \sqrt{\pi a} \cdot F(\xi)$$
$$F(\xi) \cong 1.122 - 1.40\xi + 7.33\xi^2 - 13.08\xi^3 + 14.0\xi^4$$
$$\xi = a/W$$

重ね合わせの原理により、応力拡大係数 K_I は以下となる。

$$K_I = K_{Im} + K_{Ib}$$

上記の式から、脆性破壊評価部の各時刻の応力拡大係数を算出する。

なお、ここで得られた応力拡大係数を溶接部に求められる破壊靭性とし、次年度に実施する破壊靭性試験の結果を用いて評価する。



(a) 蓋側角部コーナー落下　　(b) 蓋側辺部落下

図 5-64　各ケースの応力拡大係数の評価要素

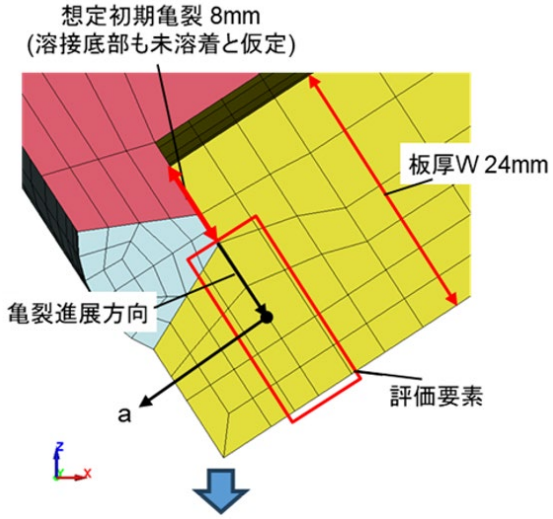


図 5-65　想定亀裂進展方向

図 5-66 に最大応力拡大係数 K I の経時変化を示す。

蓋側角部コーナー落下では、0.0074s までは負の値となっていることから、亀裂進展は発生しないが、以降は正の値をとり 0.0098s において、応力拡大係数は最大値 115.16 MPa·√m となった。これは、0.005s までは沈み込みが発生し、その後、反射し浮き上がる過程において、亀裂進展方向に対して応力が開くモードに変化したことの影響が大きい。一方、蓋側辺部落下では、基本的に正の応力拡大係数となり、0.0042s で応力拡大係数は最大 53.39 MPa·√m となった。

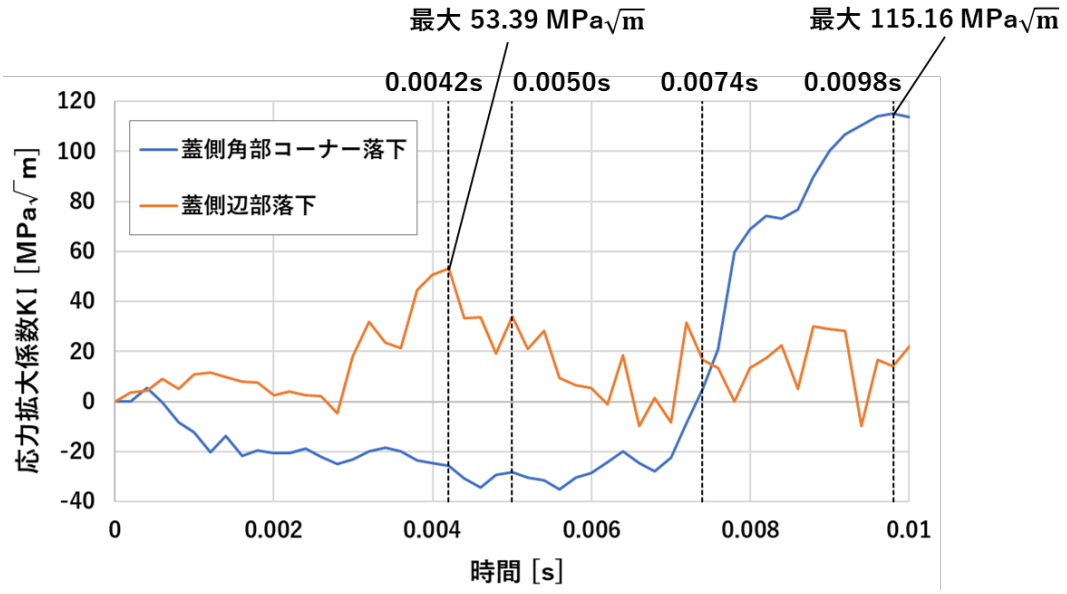
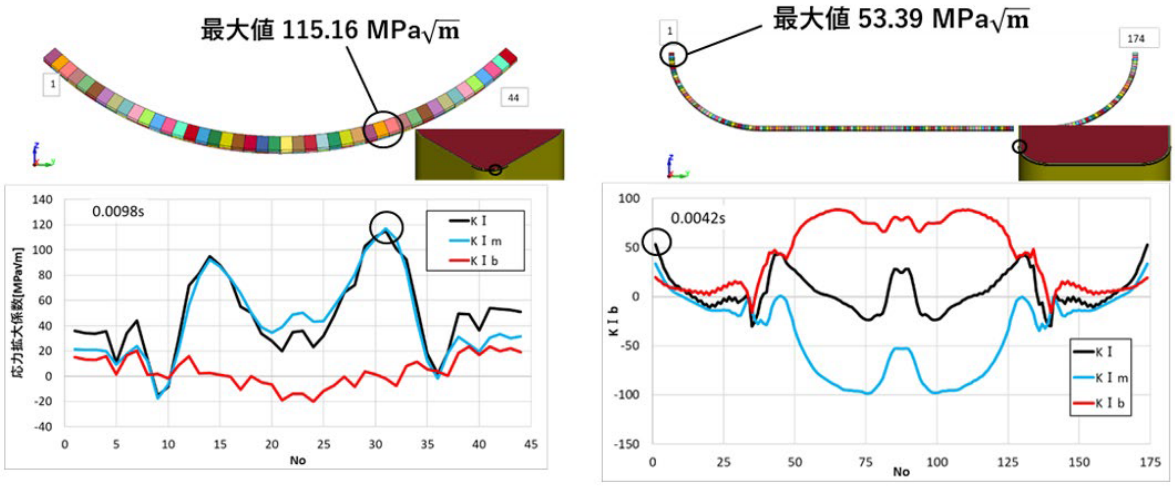


図 5-66　最大応力拡大係数の経時変化

次に、図 5-67 に応力拡大係数最大時の分布を示す。

蓋角部コーナー落下では、角部の中心から少し離れた位置で膜応力及び応力拡大係数が最大となっている。これはコーナーの R 部の中心は圧縮だが、辺に至る途中で応力が反転し捻じれが発生することで、そこで亀裂進展方向に開く側の応力が高くなったことが考えられる。一方、蓋側辺部落下では、膜応力、曲げ応力の最大最小の位置ではなく端部で応力拡大係数は最大となった。

両者を比較すると、蓋側角部コーナー落下の方が蓋側辺部落下に比べて応力拡大係数が高く、容器の材料の破壊靭性としてこれ以上の値が要求される。



(a) 蓋角部コーナー落下（0.0098s）　　(b) 蓋側辺部落下（0.0042s）

図 5-67　応力拡大係数最大時の分布

(7) 令和 5 年度の落下解析のまとめ

令和 5 年度では、実規模廃棄体パッケージの蓋溶接部から採取した試験片を用いて、落下解析や衝撃解析で必要なひずみ速度依存性に関するデータを取得し、T-M2009 モデルにより材料モデルを作成した。この材料モデルは、ひずみ速度依存性に加え、実際の製作工程を経たことによる影響やバラツキも含まれており、より現実的な材料モデルとなった。

この材料モデルを用いて、蓋側角部コーナー落下と蓋側辺部落下の 2 ケースをシミュレーションし、延性破壊評価では、両ケースにおいて、試験結果より得られた母材の破断ひずみと相当塑性ひずみの比は最大でも 0.7 となり、延性破壊の可能性は低いことを示した。また、脆性破壊評価では、先行事業と同様の評価手法を用いて破壊靭性値を応力拡大係数から算出した。今回の解析結果から、115.16 MPa$\sqrt{\mathrm{m}}$ 以上の破壊靭性値を持つ材料が求められることが示された。

今後の課題として、今回、高速引張試験の結果から熱影響部（HAZ）の軟化傾向も確認できている。そのため、HAZ の物性を考慮した落下解析と評価が必要である。また、熱影響部を考慮し、脆性破壊が溶接の縁方向に発生する可能性の検討や、最も不利と想定される落下姿勢、形態の検討、各材料の破壊靭性値の取得と検証が必要である。

5.2.5. 表面改質による SCC 対策技術の整備

(1) 背景と目的

廃棄体パッケージの蓋溶接部には、閉鎖後長期の閉じ込め性の観点から、応力腐食割れ（SCC）対策として溶接により生じた引張残留応力の改善が必要となる。先行事業では、実規模廃棄体パッケージの製作において、蓋溶接部の残留応力を改善する方法として PWHT を採用し、実機による施工確認試験を実施したことで、施工性及びその効果を確認し、角型廃棄体パッケージに対しても適用可能であることを実証した。

しかし、今後、地層処分の実施に向けて具体化していく中で、さらに熱的制限の厳しい廃棄体が対象となった場合や、放射線管理区域内での熱処理工程の構築が設備的又はコスト的に困難といった場合が生じる可能性がある。

ここでは、そのような事態においても対応可能な SCC 対策技術を整備することを目的とする。

(2) 主な残留応力改善方法

今日、実用化されている溶接後の残留応力改善方法として、主に以下の 4 つの原理を用いた手法が挙げられる。

・機械的な塑性変形
・熱応力
・クリープ現象
・表面応力改善

① 機械的な塑性変形

機械的な変形を利用する方法として、機械的応力緩和法（MSIP: Mechanical Stress Improvement Process）が挙げられる。これは、主に配管溶接部に対して施工され、配管を加圧し、溶接部近傍を一様に圧縮し塑性変形をさせることにより、隣接する溶接部内面を圧縮応力とする方法である。米国において 1986 年以来、30 以上の原子力プラントで 1300 以上の溶接部に対して、応力腐食割れ対策として広く適用されている。

② 熱応力

熱応力を利用する方法では、以下の方法がある。

・誘導加熱応力改善法（IHSI: Induction Heating Stress Improvement）
・外面誘導加熱応力改善法（EIHSI: External Induced Heating Stress Improvement）
・内面水冷溶接法（HSW: Heat Sink Weld）
・外面バタリング（BLW: Back Lay Weld）
・TIG トーチ加熱法（THSI: TIG-torch Heating Stress Improvement）

このうち、外面誘導加熱応力改善法（EIHSI）は、溶接部外面を冷却し溶接部外面の残留応力を改善する手法である。海塩粒子による外面応力腐食割れが懸念される LNG や化学プラントの機器や配管の溶接部に適用されており、管外面に高周波加熱コイルを巻き付け、管を徐々に加熱し一定の温度に達したところで加熱をやめ、ただちに管外面を急冷する。このときに発生する熱応力で管の外面に圧縮の残留応力を導入することができる。

③ クリープ現象

クリープ現象を利用する代表的な方法は、溶接後熱処理（PWHT）である。これは、溶接構造

物を昇温して溶接部にクリープ変形を生じさせることで、溶接残留応力の原因となっている固有ひずみを低減し残留応力を解消しようとするもので、今日、一般的に利用されている方法であり、原子力分野においても原子炉圧力容器の残留応力除去に利用されている。通常、大型の加熱炉に入れて施工されるが、構造物が大きいときは局部的な処理も可能である。PWHT は溶接残留応力の低減に加え、溶接部の破壊靭性の変化、溶接部熱影響部の硬化組織の軟化、残留水素量の放出といった効果も見込める。

④ 表面応力改善（表面改質）

表面の引張残留応力を改善する方法として、主に以下の手法が挙げられる。

・ショットピーニング（SP：Shot Peening）
・ウォータージェットピーニング（WJP：Water Jet Peening）
・レーザピーニング（LP：Laser Peening）
・低塑性バニシング（LPB：Low Plasticity Burnishing）

ショットピーニングは、無数の投射材（通常は鋼球）を金属表面に高速で衝突させ、表面を圧縮応力にする方法である。疲労強度、耐磨耗性などの向上という効果があることから、自動車部品、航空機関連、化学プラントの圧力容器など様々な分野で利用されている。また、原子力プラントの炉心シュラウドにも適用されている。残留応力が改善される深さは、約 0.1～0.2 mm 程度である。

ウォータージェットピーニングは、水中において高圧ジェット水を金属表面に噴射し、キャビテーション気泡の崩壊圧力により金属表面を圧縮残留応力にする方法である。遠隔操作が可能であり、原子力発電所の炉内構造物の SCC 対策技術として 1980 年代に開発され、1999 年に日本原子力発電 東海第二発電所のシュラウドの溶接部に世界で初めて適用され、炉内構造物の耐応力腐食割れ対策技術の標準工法として確立している。圧縮残留応力値が大きく、広く、深く入ることに加え、他の方法の比べ硬さ変化が少ないことが特徴である。改善深さは 1 mm 程度である。

レーザピーニングは、水中でのパルスレーザのプラズマ発生に伴う衝撃力で、材料表面を圧縮応力にする方法である。改善深さは約 1 mm である。遠隔操作が可能であり、原子炉シュラウドの残留応力改善に適用されている。このプロセスはパルスエネルギーが 10 J から 100 J にも及ぶ高出力のレーザ装置を使用することから、レーザショックピーニング(LSP：Laser Shock Peening)と呼ばれることが多い。

低塑性バニシング（LPB：Low Plasticity Burnishing、※ LPB は Lambda Technologies の商標）は、油圧でプレスされたベアリングを利用して、金属表面の微細な凹凸をローラで転圧し、平滑に仕上げる塑性加工であり、レーザピーニングで付与されるのと同様の圧縮残留応力が約 1 mm 以上の深さまで付与されることが証明されている。他の方法に比べて、1 回のパスで Rz 0.8 μmもの仕上げ面を得ることができ、一般的な CNC 加工で簡単に利用できる。原子力分野では、米国では実験用鋼製キャニスターの溶接部の SCC 対策処理としてその効果が認められ、ユッカマウンテンの長期核貯蔵プログラムの一環として実験研究に利用されている。

(3) オーバーパックに対する残留応力緩和技術に関する既往の検討

残留応力に対する緩和技術については、オーバーパックにおいても以前から検討がなされ、平成 14 年度の遠隔操作技術高度化調査の報告書では、オーバーパックへの SCC 対策として残留応力改善方法について、上記の主な残留応力緩和技術について以下のようにまとめている。

・実機のオーバーパックの残留応力除去を目的とする場合、溶接部外面の残留応力を低減でき

る手法が必要となることから、溶接部内面の残留応力を改善する方法は適用できない。また、ガラス固化体の健全性維持のため温度制限も考慮する必要があることから、PWHT の適用も困難である。したがって、溶接封入後の実機のオーバーパックへ適用可能性があるのは、現状では、EIHSI や表面応力改善法（ジェットピーニング、ウォータージェットピーニング、レーザピーニング）と考えられる。

・現在、オーバーパックの構造案として炭素鋼単体、チタン複合、さらに銅複合オーバーパックが考えられている。チタン合金は 1000 年間における腐食深さが数マイクロ～数百マイクロメートルと評価されており、耐食層にチタンを使用するオーバーパックに対しては、EIHISI と同様にピーニングによる表面応力改善法も有効であると考えられる。ただし、ウォータージェットピーニング及びレーザピーニングを適用しようとする場合、現状では水中で実施しなければならないことに留意する必要がある。また、炭素鋼単体や銅複合オーバーパックのように、腐食代が数ミリ～数十ミリメートルと評価されているオーバーパックの残留応力の改善のためには、改善深さがピーニングに対して大きい EIHSI を適用する必要がある。

また、平成 16 年度の地層処分技術調査等バリア機能総合調査報告書－人工バリア特性体系化調査－では、再度オーバーパックへの適用性について検討され、以下のようにまとめている。

・EIHSI については、実機での施工実績があり、オーバーパックを対象とした解析において有効性が示されていること、遠隔操作上の問題もないことから、オーバーパック溶接部の残留応力を低減させる方法として最も有望であり、PWHT については、実機での施工実績があり、残留応力を除去する最も信頼性のある方法であるが、オーバーパックに適用する場合にはガラス固化体の熱的制限値を考慮した施工方法の検討が必要である。

・表面応力改善法については、ショットピーニングは投射材の処理、周辺設備への影響等実際に適用する場合の課題が多く、同じ効果を期待するのであれば、ウォータージェットピーニングあるいはレーザピーニングのほうが実用性は高い。ウォータージェットピーニングとレーザピーニングとを比べた場合には、レーザピーニングの方が深くまで改善効果が期待できる分有利である。ただし、いずれの工法でも耐食性への影響、母材、溶接金属部、熱影響部への効果の同等性等は確認が必要である。

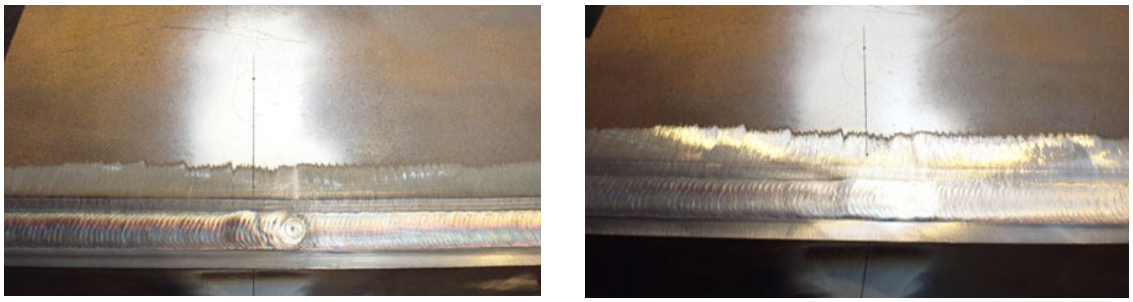
このような検討を経て、炭素鋼のオーバーパックにおいては、EIHSI 及び PWHT の適用可能性が示され、具体的な試験計画が策定された。その後、平成 24 年度にかけて 8 年間、この 2 つの手法について解析的なアプローチが続けられ、EIHSI では一部課題は残るものの、両者の適用性は概ね確立されたと言える。

(4) 実規模廃棄体パッケージの封入工程で得た今後に反映すべきこと

先行事業では、実際の製作工程を想定した製作手順に従い実規模の角型廃棄体パッケージを製作した。その中で、封入工程（蓋溶接－非破壊検査－PWHT）において抽出した今後に反映すべき課題や留意点を以下に記す。

① 溶接工程

溶接工程では、今後、遠隔施工をする場合、**図 5-68** に示すように最終層施工後のクレータ処理を遠隔で行うための装置開発が必要である。



(a) クレータ研削前　　(b) クレータ研削後

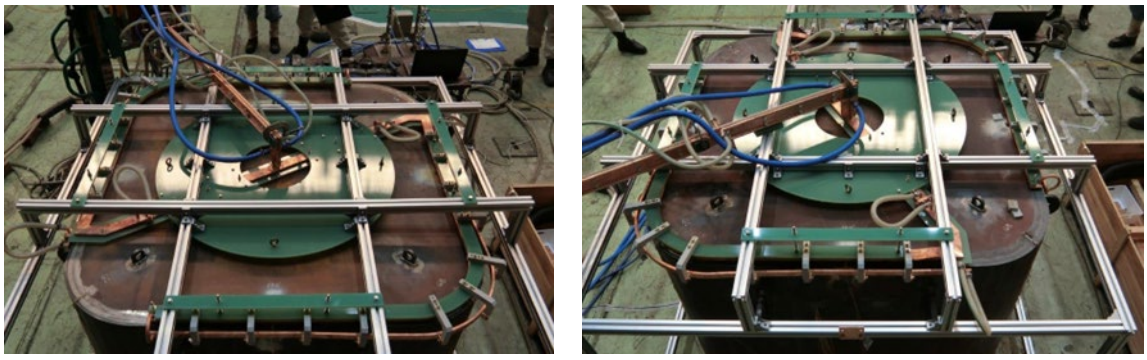
図 5-68　溶接部表面の処理

②　非破壊検査工程

非破壊検査については、過年度に実施した適用性確認試験において、蓋上面から探傷するクリーピング波法と蓋側面から探傷するフェーズドアレイ法の 2 つの方法について検討した結果、蓋上面から探傷するクリーピング波法は、溶接の余盛形状の影響を受けることから候補から外れ、蓋側面から探傷するフェーズドアレイ法を採用することとなった。実機での施工の結果、表面状態（研削処理部、打痕部分、スパッタ付着部分）によっては、エコーに若干の乱れが発生することがわかり、遠隔施工に向けては、探触子の遠隔走査に影響を及ぼすことない程度まで走査面を平坦に加工し、それを確認するような製造プロセスが必要である。

③　PWHT 工程

実規模廃棄体パッケージの PWHT 施工確認試験で採用した加熱方法は、**図 5-69** に示すように高周波誘導加熱方式であり、廃棄体パッケージ容器の蓋板溶接部全周を 2 回に分けて加熱する方法とした。これは、過年度の模擬試験体による要素試験での検討結果から、全周を 1 回で加熱する場合の電気設備的な問題や全周の温度調整の難しさを考慮したためである。PWHT 施工の結果、蓋溶接部全周を 2 回に分けて加熱する方法では、加熱部と非加熱部の温度勾配が大きくなり、均熱範囲の温度分布が大きくなる（昇温速度に差が出る）要因となるため、1 回で溶接部全周を加熱する方法が望ましいという結論に至った。



(a) PWHT 施工 1 回目の位置　　(b) PWHT 施工 2 回目の位置

図 5-69　加熱コイル設置状況

(5) 表面改質による SCC 対策技術の提案

上記のように、EIHSI 及び PWHT については適用可能性が示されているが、例えば、SCC 対策を実施したいが以下のような制約が発生することも考えられる。

・さらに熱的制限の厳しい廃棄体が対象
・放射線管理区域内での熱処理工程の構築が設備的又はコスト的に難しい
・廃棄体封入工程のリードタイムを短縮したい
・EIHSI／PWHT で解消しきれなかった残留応力を改善したい

そのような事態においても対応できる SCC 対策技術として、表面応力改善（表面改質）方法に着目し、それぞれの特性を検討したところ、**表 5-28** に示すように、レーザピーニング、ウォータージェットピーニング、バニシングはいずれも優れた効果が期待できるが、PWHT に比べ設備的簡便性に優れることも条件にするとバニシングが候補に挙がる。

表 5-28　表面応力改善（表面改質）方法の特性評価

	ショット ピーニング	ウォーター ジェット ピーニング	レーザ ピーニング	バニシング
設備的簡便性	△	×	×	○
表面粗さ	×	○	○	○
表面硬さ	○	○	○	○
圧縮残留応力	○	○	○	○
疲労強度	○	○	○	○
施工品質	△	○	○	○

SCC 対策技術としてバニシングを適用した場合、CNC 加工機でのフライス加工との併用が想定される。

図 5-70 に示すように、まず、溶接後の余盛はバニシ効果を高めるための面調整として、正面フライスにより除去する。次に、平面バニシングツールで表面改質が施され、安定した圧縮残留応力が付与される。加工後は鏡面に近い仕上げ面になり、その清浄な面で非破壊検査を実施する。

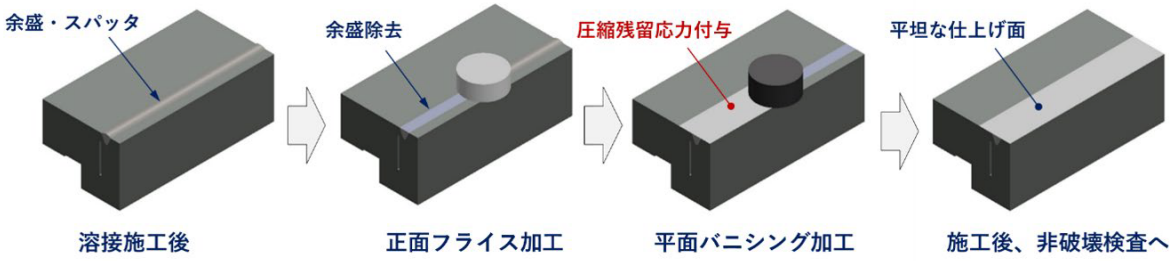


図 5-70　バニシングによる施工イメージ

また、**表 5-29** に示すように、主効果である圧縮残留応力の付与の他に幾つかの付随効果が期待できる。これらの付随効果により、上述の実規模廃棄体パッケージの封入工程において抽出した今後に反映すべき課題の解決に繋がり、封入工程の合理化が図ることができる。

なお、この手法は、設備的簡便性が高く、溶接の種類や容器の形状に依存しない汎用性があることも利点である。

表 5-29　バニシングによる主効果と付随効果

主効果	付随効果
・ 転圧加工により表層に安定した圧縮残留応力を付与	・ 遠隔での非破壊検査精度の向上 ・ 表面欠陥の無害化 ・ 耐食性の向上

(6) 令和 5 年度の表面改質による SCC 対策技術の整備のまとめ

令和 5 年度では、今日、実用化されている残留応力改善方法の概要を調査し、過年度にオーバーパックにおいて検討されていた EIHSI 及び PWHT について述べた。

それらを踏まえ、EIHSI や PWHT の適用が困難な場合を想定したときの、その他の SCC 対策技術として、表面応力改善（表面改質）方法に着目し、その中から、バニシングを用いた施工方法を提示した。

今後、バニシングによる圧縮残留応力の効果など、実現性や有用性について調査を続ける。

5.2.6. 令和 5 年度の成果と今後の課題

令和 5 年度の本高度化における成果を以下にまとめる。

(1) 後充填方式によるセメント系パッケージ内充填材の開発

高強度高緻密コンクリートの充填性を把握するため、高性能減水剤の添加量をパラメータとしてフロー試験を実施し、流動性と材料分離抵抗性のバランスの良い配合を見出し基本配合とした。流動障害を設けた模擬試験体での充填性試験では、基本配合の水準では、いずれもパッケージ内充填材として問題なく使用できる見通しを得た。

(2) 実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価

実規模廃棄体パッケージの溶接部から採取した試験片による引張試験の結果から、蓋溶接部の母材及び胴板の突合溶接部の母材はともにミルシートの値に比べ引張強さが低い傾向が確認でき、いずれも PWHT 施工確認試験での過度な熱履歴に起因している可能性がある。今後の製作技術に反映できる留意点として、実規模廃棄体パッケージに使用した鋼材 SM570 は TMCP 鋼であり、一般に TMCP 鋼は、制御圧延と加速冷却を用いて強度と靭性を確保しているため、PWHT の実施に関しては、その効果を消失させる懸念があることを念頭に置き、厳密に保持温度を管理する必要がある。また、PWHT において保持温度上限を目標値としたい場合には、予め軟化することを見込んで材料を選定した方がよい。

溶接部の健全性を評価するためには、腐食試験のデータや材料変質部位のミクロ組織や硬さ試験など、さらに詳細なデータを得た上で考察することが課題である。

(3) 異常事象に対する安全性向上に係る検討

実規模廃棄体パッケージの蓋溶接部から製作した試験片による高速引張試験により、製作工程を経た状態の溶接部のデータを取得し、この結果を基に T-M2009 モデルのパラメータを算出し、現実的な材料モデルが作成した。この材料モデルを適用して、実規模廃棄体パッケージを模した解析モデルによる落下解析を 2 ケース実施し、共に蓋溶接部の延性破壊の可能性は低く、落下時においては脆性破壊が支配的となることを確認した。

残された課題を以下に挙げる。

・引張試験の再現解析結果でのネッキング開始後の多軸応力状態から単軸への補正
・溶接部に熱影響部層もモデル化し、熱影響部での破断の可能性を検討
・破壊靭性値を取得し溶接部の脆性破壊を評価

また、プレキャスト方式によるパッケージ内充填材を搭載する廃棄体パッケージについては、製作コスト低減のため内容物の固縛方法の簡素化も課題の一つである。そのため、落下時の容器内部で生ずる 2 次衝突の影響についても、精査する必要がある。

(4) 表面改質による SCC 対策技術の整備

オーバーパックでの残留応力緩和技術に関する既往の検討結果を参照し、表面改質による残留応力改善方法の有用性をまとめたうえで、バニシングが候補に挙げ施工イメージを提示した。

さらに、その付随効果として、実規模廃棄体パッケージの製作で得た留意点を反映でき、かつ廃棄体パッケージの封入工程（蓋溶接－非破壊検査－残留応力改善）の合理化が図れることを提案した。情報収集と試験計画の策定の具体化が今後の課題である。

5.3. ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化

本章の冒頭で述べたとおり、主に再処理工程のオフガス系から捕集されるヨウ素 129 は、TRU 等廃棄物の地層処分において最も高い線量を示す核種であり、その最大線量は深成岩類の処分場における基本ケースで約 2 μSv/y と見積もられている（NUMO, 2021）。これは、ヨウ素が地質媒体やバリア材料への収着性に乏しく、収着による線量低減効果を望めないことに加え、ヨウ素 129 の半減期が約 1570 万年と長く、生物圏に至るまでの期間での減衰が見込みにくいことがその要因となっている（核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000）。

第 2 次 TRU レポートで実施された安全評価と同様の条件で、地質媒体の透水量係数が高い側に分布することを想定したバリエーションケースについて評価した結果では、廃棄体からの I-129 の浸出期間が短い場合に、最大被ばく線量が、目安とした 10 μSv/y を上回る可能性があることが分かっている（**図 5-71**）。

レファレンス技術とされている廃銀吸着材をセメント固化する技術では、AgI が還元性雰囲気で分解しやすい性質から、I-129 が地下水との接触に伴い短期間に溶出するため、その対策として、**表 5-30** に示す各項目を目標として定めて、廃棄体からのヨウ素の溶出抑制によって被ばく線量を低減させる技術の開発が行われてきた（Idemitsu and Sakuragi, 2015; 原環センター, 2020）。

平成 25 年度以降の研究開発では、国内で検討・開発されてきた固形化技術について、**表 5-30** の目標の達成の可能性や、工学的な製造プロセスの構築の可能性等を指標として、技術の絞り込みを実施し、それらの見込みが得られた HIP 固化技術（オフガス系でヨウ素 129 を AgI として捕集した多孔質アルミナ製フィルター材（廃銀吸着材）に工業用アルミナ原料を加えて、熱間等方圧プレス（HIP：Hot Isostatic Pres）によって固化する技術）と BPI ガラス固化技術（BPN 結晶の窒素を廃銀吸着材から乾式脱離したヨウ素で置換した BPI 結晶に、鉛－ホウ素－亜鉛-ビスマス系の低融点ガラスのフリットを加えて低融点で溶融し、ガラス固化する技術）を対象として、固化体からのヨウ素の溶出現象の解明と、そのモデル化を進めてきた。

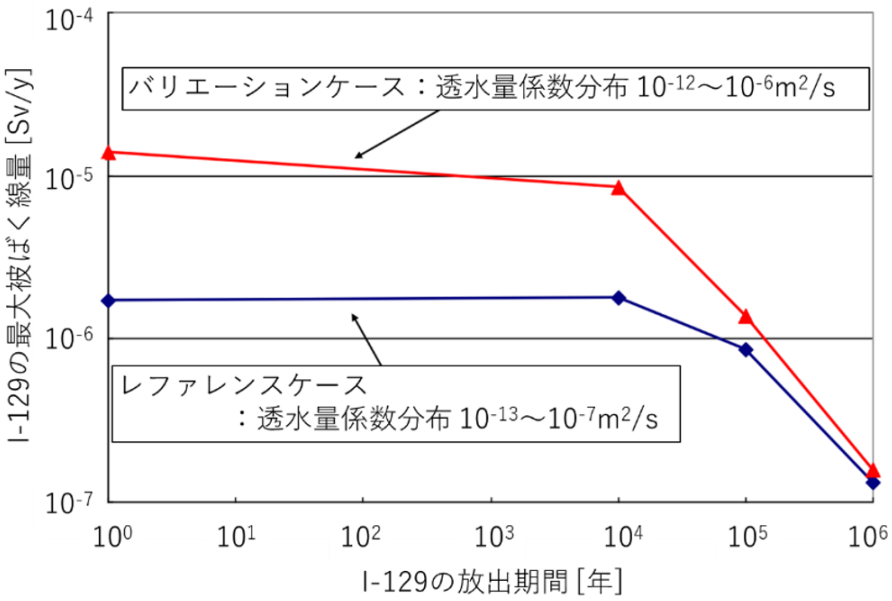


図 5-71　I-129 の最大被ばく線量と浸出期間の関係
（原環センター, 2007）

表 5-30　ヨウ素固定化技術への要求

要求項目	目標	説明
固化体の性能	溶出フラックスが小さい （溶出期間 10 万年）	地質媒体の透水性が高い場合でもレファレンスケースと同等以下の最大線量を保てる（**図 5-71**）溶出期間
説明性	長期間のヨウ素溶出挙動に関して、説明性の高い予測ができること	
処分環境への適用性	処分場周囲の温度、酸化還元電位、地下水組成等の環境に対して十分な耐性があり、かつ溶出フラックスの増大が十分に小さいこと	
2 次廃棄物の発生抑制	固化工程でのヨウ素の溶出が十分小さい（固化体への捕集率 95%以上）	ヨウ素固定化処理の工程で 5%以上のヨウ素を含む 2 次廃棄物が発生すると、最大線量の低減効果が得にくくなる
その他	再処理工程への親和性及び経済性	

その中で、HIP 固化技術に関しては、固化体からのヨウ素の溶出について、現象モデルが基本ではあるものの、固化体の製作条件や空隙構造が同等であれば、地下水条件等が異なっても、任意時間までのヨウ素の溶出量を予測できる、ヨウ素溶出挙動モデルを構築した（原環センター, 2023）。

一方で、BPI ガラス固化技術については、比較的短期間（約 2 年）の浸漬試験結果から得られた固化体からのヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{1/2}$ に比例すること、及び浸漬試験の期間を延長してもこの挙動が約 11 年経過後も変化しないことを確認している（原環センター, 2019）。また、この結果は、NMR、XAFS、及び XPS 等の結果からリバースモンテカルロ法で構築したガラスの微細構造モデルをもとに、ガラスに含まれる Pb-O 及び B-O 結合の結合パラメータを仮定してモンテカルロ法で実施したガラスの溶解、ヨウ素溶出予測（原環センター, 2017）でも支持されている。

これらは、比較的長期間の試験によるものではあるが、実験結果に対するフィッティング、および結合エネルギーをフィッティングパラメータとした解析の結果であることから、ヨウ素の溶出に係るガラスの溶解の素反応が長期間にわたり変化しないことを示すこと、ならびに、解析において設定した結合パラメータの妥当性、または、仮定したガラス溶解の素反応の妥当性を理論的に示す事によって、その信頼性、説明性が確保できるものと考えた。

本高度化は、TRU 廃棄物の地層処分の安全評価における支配核種であるヨウ素 129 の影響低減のための、ヨウ素の代替固化技術の長期間におけるヨウ素閉じ込め性の信頼性および説明性の向上を目的とし、BPI ガラス固化体を対象に長期的なヨウ素の溶出挙動の継続性の説明、およびそれに係る素反応の確認を実施するものである。

5.3.1.　目的と 5 か年の計画

(1)　目的

ヨウ素の代替固化技術の開発の目的は本節の冒頭で述べたように、TRU 廃棄物の地層処分の安全評価における支配核種であるヨウ素 129 の影響低減であり、その結果、代替技術の採用によって候補地の地質媒体の透水量係数が大きい、動水勾配が大きいなど、水理特性が良好とは言えない場合でも、ヨウ素 129 の線量を抑制可能とすることにある。

これまでの研究開発によって、HIP 固化体及び BPI ガラス固化体の 2 技術について、10 年程

度の浸漬試験や、小規模な試験体の作製試験の結果に基づいて、**表 5-30** のうち、固化体の性能、及び 2 次廃棄物の発生抑制について目標達成の見込みを得ている（原環センター, 2020）。また、処分場で想定される環境への適用範囲について、明らかにしている（原環センター, 2023）。

残された課題である、10 万年を超える長期間のヨウ素の溶出挙動に関する説明性の高い予測について、HIP 固化体からのヨウ素の溶出挙動に関しては、これまでの研究開発によって、現象論がベースとなっているものの、任意時間までのヨウ素の溶出量を算出可能な理論解を提示することができた（原環センター, 2023）。この理論解は、これまでに実施した種々の浸漬液を用いた試験結果について、固化体の空隙率が高い場合（製造条件によるが、ヨウ素の溶出が速まるため、そのような固化体の製造条件を採用することはない）を除いて、浸漬条件下でのアルミナの溶解度を考慮することによって、統一的にヨウ素の放出量を算出できるものである。

一方で、BPI ガラス固化体からのヨウ素の溶出挙動に関しては、本節の冒頭で述べたとおり、比較的短期間（約 2 年）の浸漬試験結果から得られた固化体からのヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{1/2}$ に比例すること、及び浸漬試験の期間を延長してもこの挙動が約 11 年経過後も変化しないこと、及びこの結果からヨウ素の溶出に係るガラスの溶解の素反応がこの期間では変化しないことが分かっている。この結果は、実験室での実験期間としては長期にあたる 11 年間の試験結果によるものであり、またガラスの微構造に基づいて実施したモンテカルロ法での解析では、各元素間の結合パラメータをフィッティングパラメータとしており、これら経験的に求められたパラメータや、ヨウ素の溶出に係る素反応について、その長期的な継続性に対する合理的な根拠を示すことで、ヨウ素の溶出挙動、ならびに溶出量の予測の信頼性を確保する必要がある。

これらを受けて、本高度化においては、ヨウ素の溶出予測の信頼性に係る課題が残る BPI ガラス固化体を対象とし、固化体からのヨウ素の溶出に係る素反応とその継続性、及びヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{1/2}$ に比例することの根拠の確認に加え、ガラス表面での変質層の生成等を含めた反応に対しての、理論的な説明を構築することで、ヨウ素の溶出挙動、ならびに溶出量の予測の信頼性を確保し、この技術が地質媒体の水理特性が好ましくない場合でも、TRU 等廃棄物の地層処分でのヨウ素 129 の線量を増大させないための合理的で信頼性の高いオプション技術として成立することを示すことを目的として、後述する各試験、及び評価を実施する。

また、実用化に向けた工学的な課題である、固化処理のスケールアップや、実プラントの設計については、実廃棄体を用いた物質収支の定量化などが必要であるため、今後、代替技術の採用が具体化するタイミングで検討できるよう、関係機関でその必要性について情報を共有している。

(2) 5 年間の計画

図 5-72 に、本高度化の 5 か年の計画の概略を示す。

(1)項で述べたとおり、本高度化では、固化体からのヨウ素の溶出に係る素反応とその継続性の説明、及びガラス表面での変質層の生成等を含めた反応に対しての説明のため、それぞれガラス構造に基づいた BPI ガラスの水和・溶解挙動のモデル化と、溶解フロント近傍の構造の取得とを実施する。

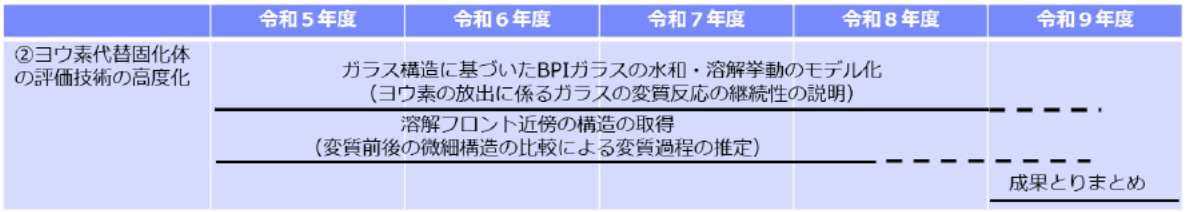


図 5-72　ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化の 5 か年の計画

これらのうち、水和・溶解挙動のモデル化においては、これまでに構築し第 1 原理計算等の理論計算に耐えうるよう精度を高めてきた微細構造モデル（原環センター, 2023）をもとに、後述する溶解フロント近傍の詳細分析で得られる構造およびその溶解に伴う変化から、理論計算によって、溶解フロント近傍でのガラスの水和及び溶解、表面近傍での 2 次鉱物の析出、それらに伴う物質移行特性の変化などを明らかにし、それらの長期的な継続性や理論的な妥当性を示す計画である。また、溶解フロント近傍の構造の取得においては、表面の変質層と、内部の健全なガラス層との間に、極めて薄い非晶質層が存在することが分かった（原環センター, 2023）ことから、その領域の厚さや化学組成の変化、ガラス構造の変化等を取得し、ヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{1/2}$ に比例すること、及びガラスの溶解に係る素反応が変化しないことの根拠を得る計画である。

これらに加え、令和 4 年度に実施した 2 次鉱物の分析において検出された（原環センター, 2023）、ヨウ素と鉛とを主成分とする 2 次鉱物（図 5-73）を対象に、処分後の環境変化によって、この相に固定されたヨウ素が再び溶出する可能性の有無、及びその影響を評価する必要があることから、この 2 次鉱物の相の同定、ならびにその溶解度等のデータの整備についても実施していく。

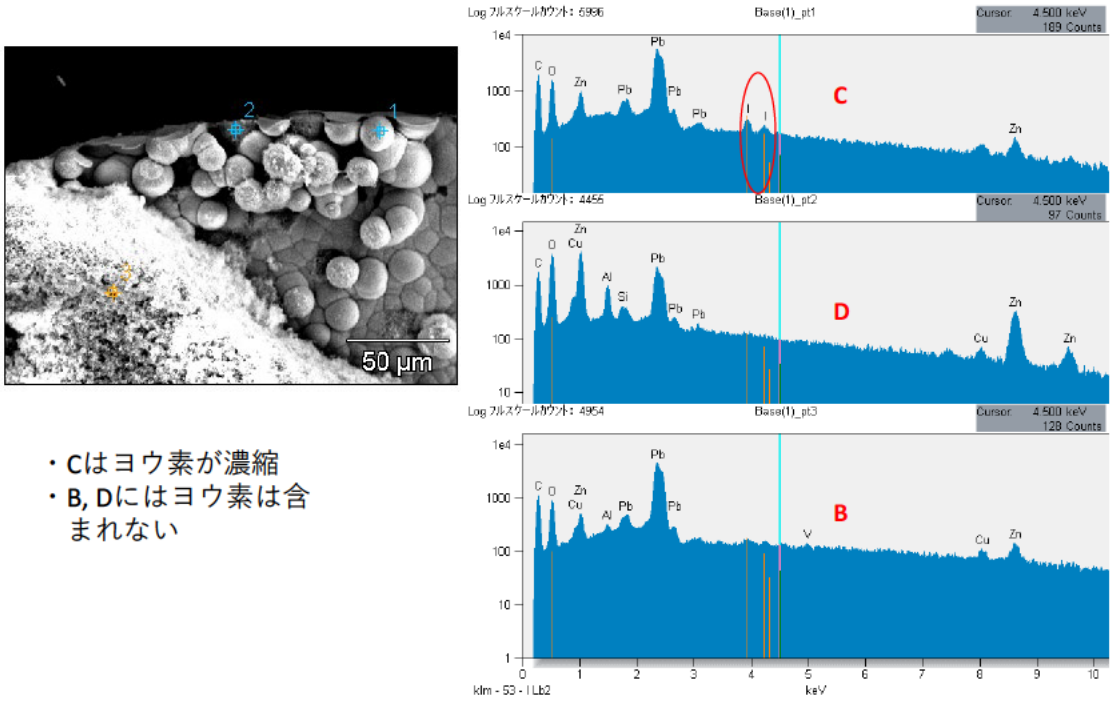


図 5-73　BPI ガラス表面に析出した、鉛－ヨウ素からなる球状の 2 次鉱物とその分析結果（球状の析出物が C）

5.3.2. 溶解フロント近傍の構造の取得

BPI ガラス固化体の溶解およびヨウ素の放出挙動に関しては、これまでに図 5-74 に示すように、浸漬液の液性によって、ヨウ素の溶出量（規格化浸出量）とホウ素のそれとが調和的になるケースと、非調和的になるケースが存在することが分かっている（原環センター, 2020）。

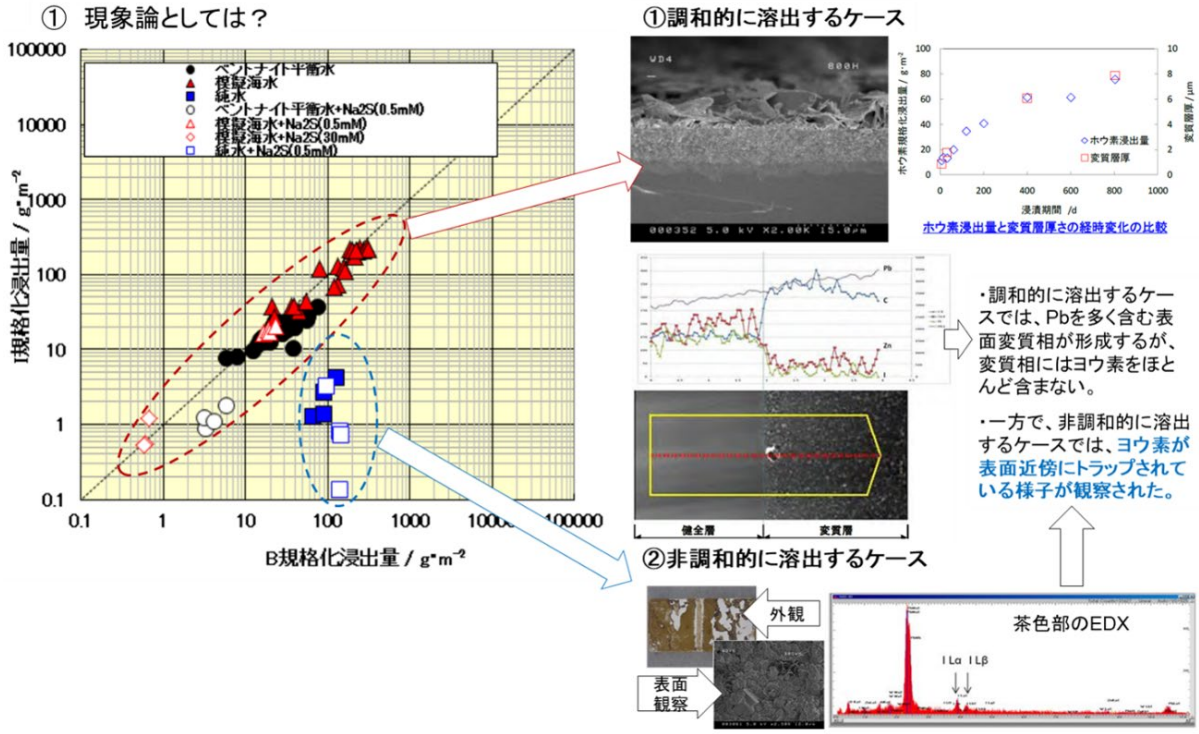


図 5-74　BPI ガラス固化体の浸漬試験に於けるヨウ素の溶出にともなう現象の分類

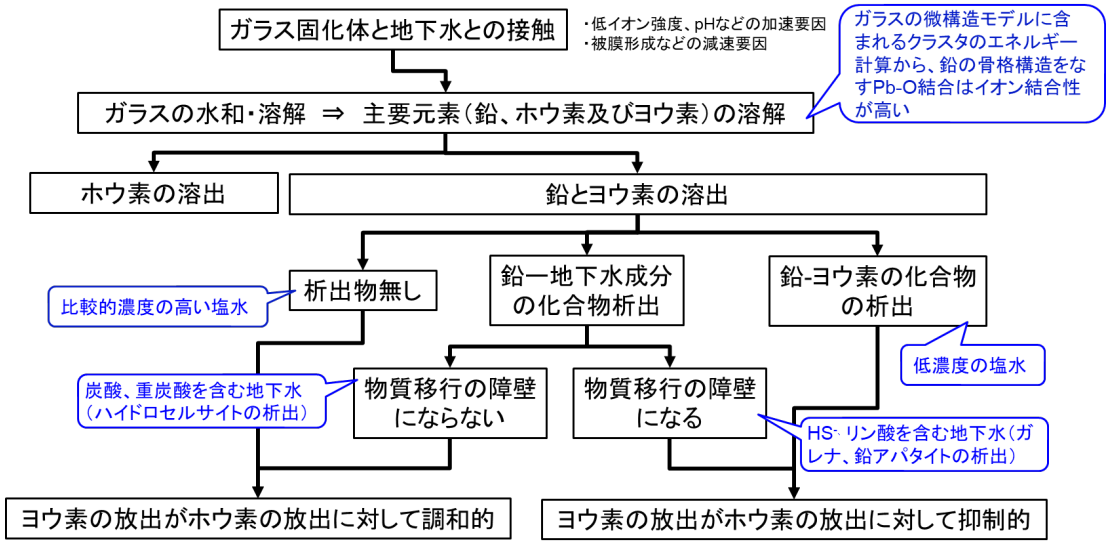


図 5-75　浸漬試験結果に基づいて推定した BPI ガラス固化体からのヨウ素の溶出過程

また、このガラスの溶解に伴うヨウ素の溶出挙動と、その際析出する 2 次鉱物相との関係は、令和 4 年度までの成果（原環センター, 2023）に基づいて図 5-75 のようにまとめられる。

この結果から、ヨウ素の溶出挙動の違いが、浸漬液の液性の違いによって生じるガラスの溶解量の違いと、それに伴う 2 次鉱物の違いに起因するもの考えることができた。

ここで、図 5-75 のうち、ガラスの水和・溶解と、ホウ素の溶出、及び鉛とヨウ素の溶出までは、浸漬液の液性による分岐がないため、このガラスの水和・溶解と各成分の溶出に係る素反応の継続性を述べることで、長期にわたる BPI ガラスの溶解挙動の継続性の説明に繋がるものと考えた。

この、ガラスの水和・溶解とガラスの主要な各成分の溶出に係る素反応、及びヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{1/2}$ に比例することの説明に向けて、反応前後、あるいは反応中のガラスの巨視的及び微視的構造の変化を、変質層（2 次鉱物相）と内部の健全なガラス相との間に存在する非晶質相の詳細分析によって明らかにすることとした。

(1) 試料

ここでは、変質層直下の非晶質相（図 5-76 の測定点 05 から 07 までのハイドロセルサイトによる炭素のシグナルが検出されない範囲）の分析が目的であることから、ホウ素の溶出量が多く、また、変質層で物質移行が制限されない試験体として、ハイドロセルサイトが生成し、ヨウ素の規格化浸出量がホウ素のそれと調和的な、ベントナイト平衡水に 3650 日浸漬した試験体を選択した。

(2) 分析

分析は図 5-76 に示す、令和 4 年度に実施した電子エネルギー損失分光法（EELS）での分析で検出された非晶質相を対象として行った。走査型透過 X 線顕微鏡（STXM）法、及び透過型分析電子顕微鏡を用いた特性 X 線分析（STEM-EDS）によって、その構成成分の濃度分布の有無に着目した分析を実施した。

(3) 分析結果

図 5-76 に示す令和 4 年度の EELS 分析の結果では、非晶質相ではボイドの生成が観られている。その下部の健全なガラス相ではボイドが観られない（BPI ガラスにおいては光の透過時に乱反射が観られないことからも推定されるとおり）ことから、このボイドの生成は、ガラスの主要成分の溶出によって生じたものと考えられた。

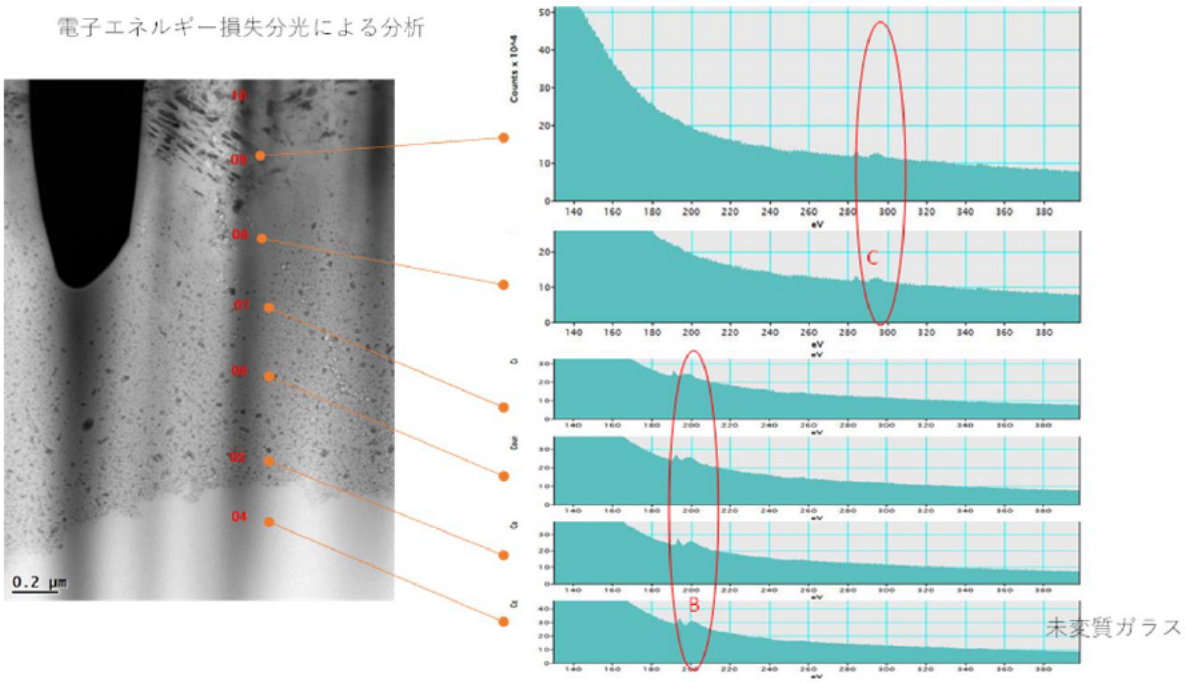


図 5-76　ベントナイト平衡水に 3650 日浸漬した BPI ガラス固化体の
変質層と健全ガラス相の界面近傍の EELS 分析結果
（図中の B 及び C はそれぞれホウ素及び炭素のシグナルを示す）

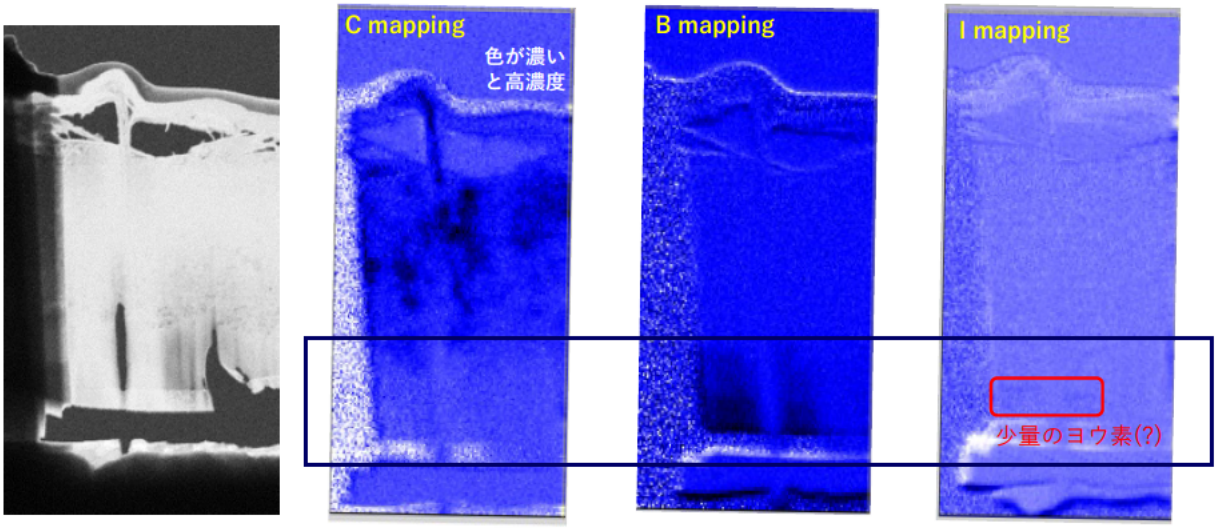


図 5-77　STXM による炭素、ホウ素、ヨウ素のマッピング
（図中の黒枠は吸光度測定を実施した範囲を示す）

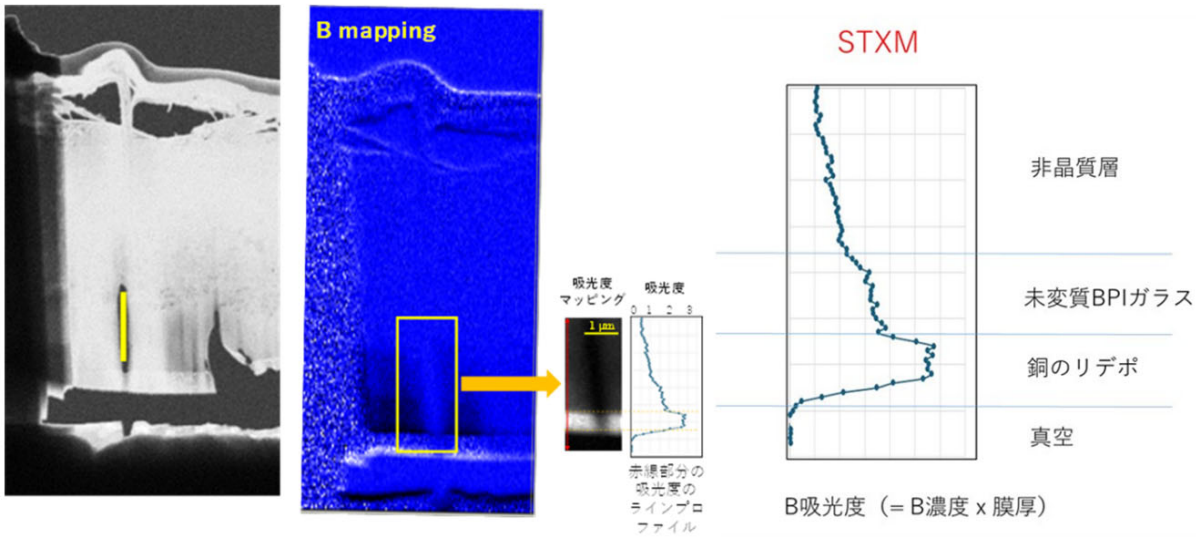


図 5-78　非晶質部のホウ素の吸光度マッピング
（右端は吸光度の拡大図）

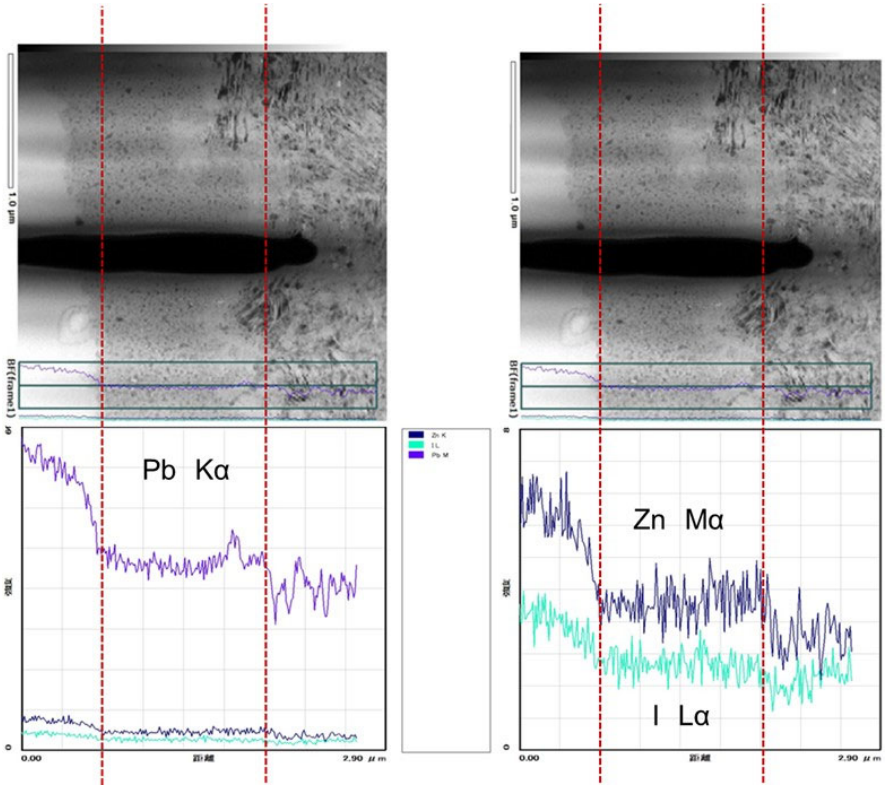


図 5-79 STEM-EDS によるヨウ素、鉛、亜鉛の線分析の結果
（図中の赤枠は非晶質相の範囲を示す）

図 5-77 及び図 5-78 に、炭素、ホウ素、ヨウ素及びホウ素の STXM によるマッピング結果をそれぞれ示す。これらの結果からは、非晶質相では各元素の濃度の変化は見られなかった。また、図 5-79 に示す、STEM-EDS での線分析結果からも、非晶質相では各主要元素について濃度に勾

配や特異な分布は観られないことが分かった。
また、同様の分析項目について、蛍光 STXM 法での分析を試みたが、必要な強度のシグナルを得ることができなかった。

(4) 分析結果から考えられるガラスの溶解過程

これまでに、浸漬試験結果とマイクロリアクターを使った変質試験の結果の比較などから、変質層の生成はガラス成分の液相への溶出とほぼ同時に、固相表面で起きることが分かっている（原環センター, 2017）。これに加えて、変質層直下に生じる非晶質相ではボイドの生成がある一方で、変質層内のガラスの主要成分濃度には、固化体内部から表面に向かっての濃度分布がないことが分かった。このうち、特に変質層で濃度分布が生じないことは、BPI ガラスの溶解が特定の成分の溶解が優先するような反応ではなく調和溶解となっていることを示す結果であり、図 5-75 のうち、ガラスの水和・溶解と、ホウ素の溶出、及び鉛とヨウ素の溶出までの反応の形態が、この試験の期間内で変化しなかったことが推定された。一方で、ヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{1/2}$ に比例することを、濃度勾配を駆動力とした拡散挙動によって説明することはできないことが明らかになった。
浸漬期間によるこの変質層の厚さの変化等のデータを取得することで、ヨウ素の溶出量の変化について検討を加えていくことを考えている。

5.3.3. ガラス構造に基づいた BPI ガラスの水和・溶解挙動のモデル化

令和 5 年度は、これまでに構築および最適化してきたガラスの微細構造モデルに基づいて、BPI ガラスの溶解および 2 次鉱物の析出等に伴うヨウ素の放出挙動を理論的に解析するための方法論の提案、及び解析に必要となる原子間ポテンシャルの導出に係る理論計算に基づくエネルギー計算を実施した。
BPI ガラス固化体からのヨウ素放出現象の説明には、ガラスが溶液と接触することで生じる様々な現象を含めて、溶出前後の状態変化を組成、非晶質構造、析出相とその組織形態の観点から明らかにする必要がある。本年度の検討では、非晶質変質層も含めた分析が進められており、STEM-EDS 及び STXM による微小領域の分析結果に期待するところである。非晶質変質層の組成（あるいは、濃度勾配も含めた傾斜組成）が明らかにされたものと仮定し、ヨウ素放出現象の理論的説明に必要となる 2 項目、ガラス／非晶質変質層の界面反応、非晶質変質層中の物質移動について検討するための計画を策定した。

(1) 原子間ポテンシャルの導出に係る理論計算に基づくエネルギー計算

本高度化では、BPI ガラス固化体の微細構造モデル及び関連する結晶などに対する理論計算を継続的、かつ、段階的に実施し、これらの関連物質における結合様式の理解と、水和、特定成分の溶解及び物質析出に関わる結合の形成と開裂過程を精査することにより、ヨウ素溶出モデルの理論的裏付けを図る。また、BPI ガラス固化体溶解に関わる素過程を抽出し、個々の過程について溶解モデルへの組み込みの必要性と可能か否かを判断することを目的とし、5.3.2 項及び 5.3.4 項の調査と合わせた検討を実施する計画であり、ここでは、そのうち構成元素間の原子間ポテンシャル導出に関わる理論計算に基づくエネルギー計算の結果について述べる。
今後 5 年以内に構築を計画する詳細化した BPI ガラスの溶解現象モデルに組み込むことを想定し、密度汎関数理論（DFT）計算に基づく原子間ポテンシャル導出を実施した。この BPI ガラスの溶解現象モデルは、溶解に関わる様々な素過程について、それらの必要性に基づいて取捨選

択した上で、数値モデル化されるものであるが、実際に観察される現象を再現して溶解挙動を正確に記述し、より信頼しうるものとなるには、エネルギー観点で現象を記述するモデル化が必須である。この目的のために、原子間に作用する力及びエネルギー変化を記述するポテンシャルモデルは、理論計算に基づいたものが適切であると判断した。しかしながら、ガラスと溶液、それらの界面に存在する非晶質変質層を対象とし、取り扱う空間的、時間的スケールを考慮すると、より単純なエネルギーモデルで系を記述可能にすることが望ましい。今年度の検討では、Pb-O に関わる原子間ポテンシャルを 2 体ポテンシャルにて記述し、関連する結晶（α-PbO 及びβ-PbO）の構造が再現性からその妥当性を判断した。

エネルギー計算には、汎用の平面波基底 DFT 計算プログラム Quantum ESPRESSO を使用した。α-PbO（litharge）及びβ-PbO（massicot）を基本構造とし、結晶を構成する原子の位置を乱数発生に基づいて一定範囲で乱した構造をもつ原子配列を複数作成し、各原子配列に対する DFT 計算を実施することで、様々な配置に対する力場（全エネルギー、全応力、応力のテンソル成分、個々の原子に働く力）を評価した。一方、これらと同じ原子配列に対して、Coulomb-Buckingham 式による古典力場から計算される各原子配列に対する力場は、分子動力学計算コード LAMMPS を用いて算出した。古典力場計算と DFT 計算の差を指標として最小化することで、古典力場に与えた原子間ポテンシャルパラメータを最適化した。**表 5-31** にα-PbO 及びβ-PbO それぞれの結晶構造再現に最適化した Buckingham パラメータ値を O-O、Pb-O、Pb-Pb の各ペアごとに示した。また、**図 5-80** は、このとき古典及び DFT 計算で評価した力場をそれぞれ縦軸と横軸に対応関係（α-PbO の場合）を示したものであり、**表 5-31** に示した最適化パラメータによる原子間ポテンシャルが DFT 計算による力場を概ね再現していることが確認された。

表 5-31　α-PbO（上段）及びβ-PbO（下段）に最適化した Buckingham パラメータ

Atom i	Atom j	A_{ij} (eV)	ρ_{ij} (Å)	C_{ij} (eV·Å^6)
O	O	2597.09	0.309	201.18
Pb	O	16435.18	0.253	453.24
Pb	Pb	7376.53	0.362	0.0
O	O	16321.09	0.294	940.17
Pb	O	2831.17	0.249	0.0
Pb	Pb	16721.93	0.359	2016.14

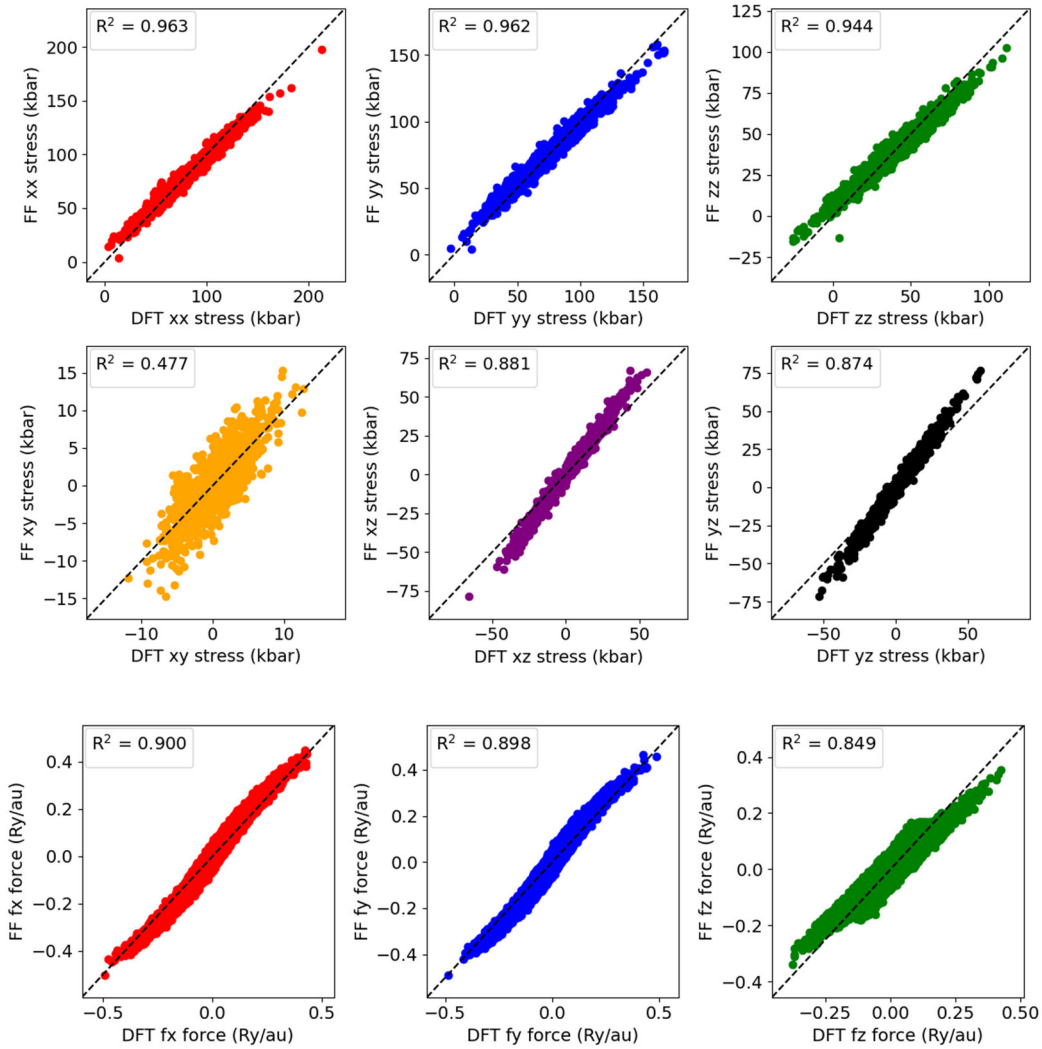


図 5-80　古典（縦軸）及び DFT 計算（横軸）で評価された力場の対応関係（最適化後）

最適化された原子間ポテンシャルパラメータを用いて、α-PbO 及びβ-PbO 結晶の構造再現性を確認した。α-PbO での結果を、平均二乗変位と再現構造で**図 5-81** に示した。最適化されていないパラメータ初期値（initial）を用いた場合、MD 計算開始直後に平均二乗変位が大きく変化し、結晶構造が維持できていないのに対し、最適化パラメータ値（optimized）を用いた場合は、Pb と O はα-PbO 構造から大きな変位を示すことなく、その結晶構造を維持した。両結晶ともに概ねその構造を維持することが確認された。2 体ポテンシャルで記述できる力場の限界が想定されるが、DFT 計算による力場を古典力場として利用できる可能性を示しており、大幅な計算コストの低減に寄与するものである。

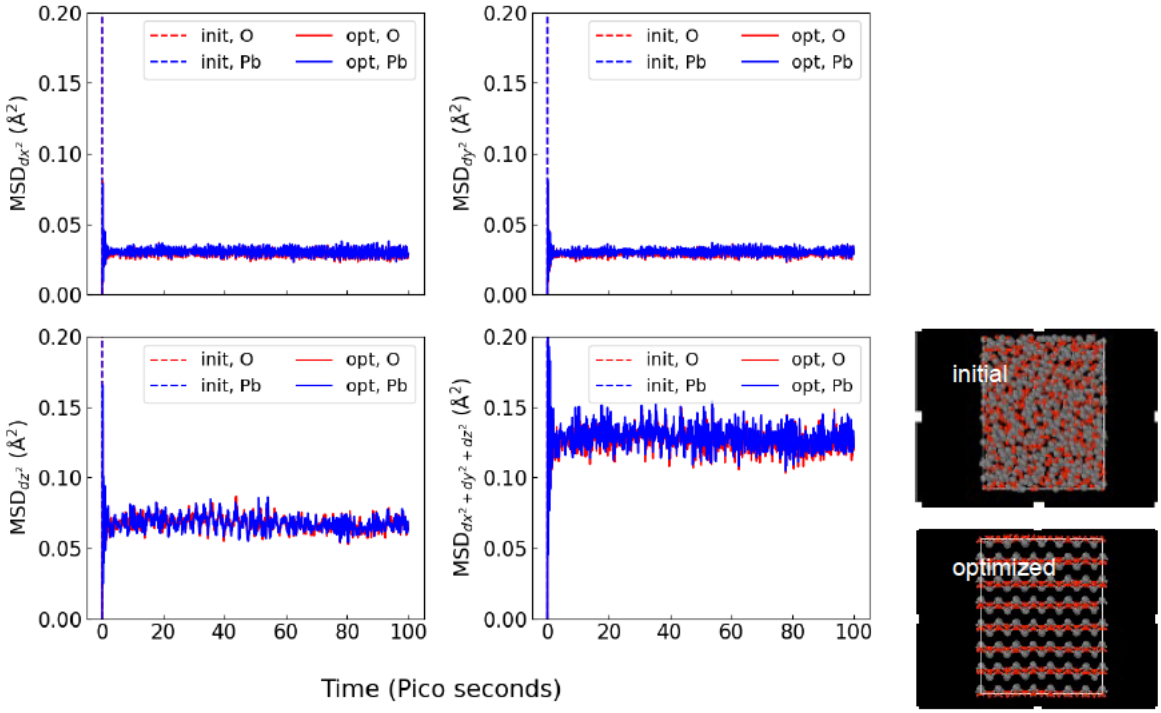


図 5-81　初期値及び最適化された原子間ポテンシャルパラメータを用いた α-PbO の MD 計算による平均二乗変位と構造再現

今年度の検討では、単純酸化物である α-PbO 及び β-PbO に限定して DFT 計算を実施し、Pb-O に関する有効な 2 体ポテンシャルを得たことに留まるが、本手法による原子間ポテンシャルパラメータの最適化・導出が有効であることを確認できたことから、BPI ガラス固化体を構成する他の単純酸化物、複合酸化物、含水化合物などに加えて、ヨウ素含有結晶への適用を順次検討し、溶解現象モデルでの利用が必要となる各種原子間ポテンシャルの導出を想定している。

(2)　ガラス／非晶質変質層の界面反応、非晶質変質層中の物質移動についての検討計画

ここでは、(1)で得られた結果に基づき、詳細化した現象モデルを今後 5 年以内に構築するための試験及び調査の計画を具体化に向けた検討を実施した。

BPI ガラス固化体からのヨウ素放出現象の説明には、ガラスが溶液と接触することで生じる様々な現象を含めて、溶出前後の状態変化を組成、非晶質構造、析出相とその組織形態の観点から明らかにする必要がある。本年度の検討では、非晶質変質層も含めた分析が進められており、STEM-EDS 及び STXM による微小領域の分析結果に期待するところである。非晶質変質層の組成（あるいは、濃度勾配も含めた傾斜組成）が明らかにされたものと仮定し、ヨウ素放出現象の理論的説明に必要となる 2 項目、ガラス／非晶質変質層の界面反応、非晶質変質層中の物質移動について検討するための計画を述べる。**図 5-82** にモデル化計画の全体像の模式図を示す。

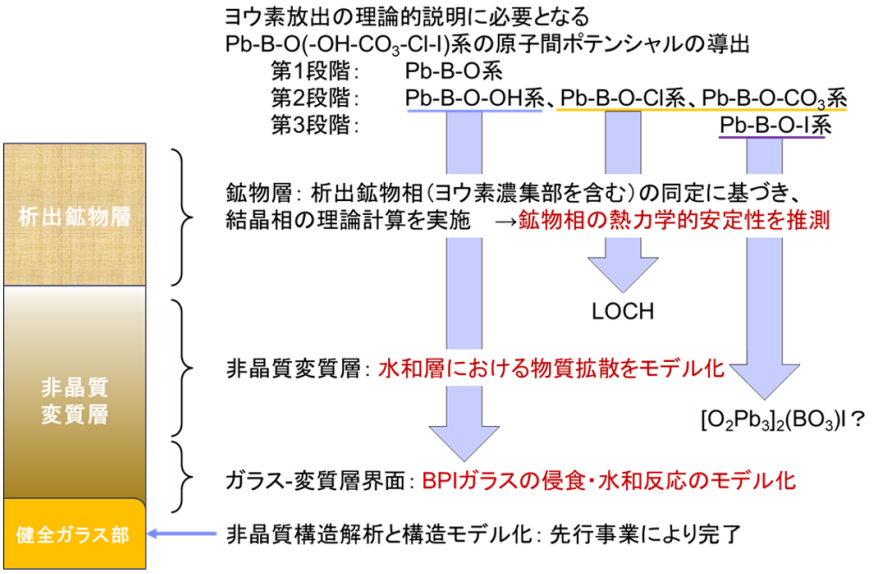


図 5-82　BPI ガラスからの変質/ヨウ素溶出の理論モデル化の模式図

1)　ガラス／非晶質変質層の界面現象

これまでに明らかにされた BPI ガラス固化体のガラス構造に対し、非晶質変質層の微視的構造に関する知見は乏しく、ヨウ素放出現象のモデル化に関わる非晶質変質層の構造を組み入れることは困難である。また、微小領域であることから、BPI ガラス固化体に対して先行事業で実施した放射光や中性子を利用した構造解析の対象とすることも困難である。したがって、組成分析及び限定された元素に関する状態分析に基づいた構造モデル化として計画する。(1)で進められる原子間ポテンシャルの導出が完遂すれば、古典力場での記述という制限が残るが、理論計算に基づくポテンシャルモデルのもとで、非晶質変質層の構造推定が可能になるものと考えられ、BPI ガラス固化体と非晶質変質層の界面での水和やガラス骨格の溶出も詳細化に向けた検討が可能になるものと考えられる。

2)　非晶質変質層中の物質移動現象

溶出試験においてヨウ素とホウ素が浸出期間の 2 分の 1 乗に比例して調和溶解する条件では、非晶質変質層中での何らかの拡散律速を示唆するが、ヨウ素放出現象の理論的説明に含めて溶出を律速する拡散物質の同定が必要になる。具体的な方策は未検討であるが、STXM 分析による非晶質変質層の傾斜組成と関連付けて、物質拡散の速度論を含む説明が必要である。

3)　ヨウ素固定相の析出

BPI ガラスが非調和溶解する条件においては、溶出したヨウ素がヨウ素含有鉱物として析出し表面に固定される。5.3.4 項で進められるヨウ素固定相の同定により、結晶構造あるいはそれに類する何らかの構造的特徴が明らかになれば、想定した構造モデルに対する理論計算に基づいてヨウ素固定相の安定性及びヨウ素保持性能の評価を行う。

5.3.4. 非調和溶解時に生じる鉛及びヨウ素を含む 2 次鉱物の分析

図 5-75 に示したとおり、概ね 10^{-3} mol/ℓ 以下の低濃度の塩水やイオン交換水への浸漬では、図 5-73 に示した、鉛及びヨウ素を含む 2 次鉱物が析出することによって、ヨウ素の規格化浸出率がホウ素のそれに対して抑制的になることが分かっている（原環センター, 2023）。地層処分においては、廃棄体を埋設する処分坑道は地下深部に建設されることから、このような低濃度の地下水が緩衝材を透過して廃棄体に到達するケースはごく稀にしか存在しないことが想定される。

しかし、この 2 次鉱物がヨウ素を固定するものであることから、その後の環境変化によって地下水の水質の変化や、含まれる炭酸、重炭酸の濃度の変化に伴うヨウ素の放出の有無や、その影響を見積もっておくことが必要である。

これまでの分析では、この 2 次鉱物の相の同定には至っておらず、溶解度や溶解速度に関するデータも得られていないことから、令和 5 年度はこの 2 次鉱物の同定を試み、既知の典型的な鉱物であった場合には、その溶解度等に基づいてその長期的な挙動について考察することとした。

(1) 試料

分析に供する試料は、ヨウ素を含む 2 次鉱物が析出する NaCl 濃度が 0.05 mmol/ℓ の浸漬液に浸漬した BPI ガラスとし、令和 4 年度に分析に供した 555 日浸漬後の試料に加え、新たに浸漬した 120 日浸漬後の試料を用いることとした。

(2) 分析

令和 4 年度に実施した、試料表面に生成した黄色い析出物の X 線回折法（XRD）による鉱物分析の結果、5 mmol/ℓ 以上の濃度の NaCl 溶液への浸漬では、ヨウ素を含む球状の鉱物（図 5-73）の析出が観られず、鉛の水和酸塩化物（lead oxide chloride hydrate : LOCH）と考えられるピークが観察された（**図 5-83**）。これを受けて、球状の析出物を対象に、EELS、透過型電子顕微鏡を用いた電子線回折、ならびに微少部 X 線回折（μ-XRD）による分析を実施した。

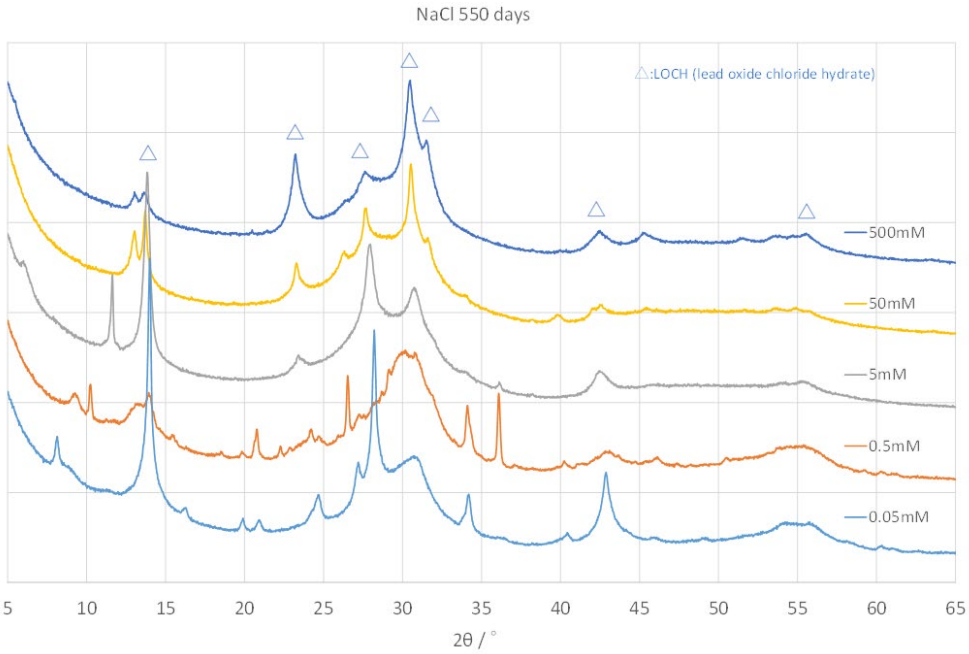


図 5-83　555 日 NaCl 水溶液に浸漬した試料の XRD

(3)　分析結果

図 5-84 にヨウ素を含む球状の 2 次鉱物の表面及び内部の EELS 分析の結果を示す。

表面、内部のいずれからもヨウ素が検出されており、その強度は健全なガラス相の分析で得られるそれと比較して約 5 倍であることから、BPI ガラスから溶出したヨウ素がこの相に濃集されることで、ホウ素の溶出量に対して非調和的となっている可能性があることが分かった。また、この相はホウ素も含有する化合物であることも明らかになった。

この相について、透過型電子顕微鏡の暗視野像から、格子像を得たところ、約 7 Å 及び約 3.1 Å の面間隔を有する結晶相であることが示された（図 5-85）。

μ-XRD の結果を、後述する（$O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ の XRD のパターンと併せて図 5-86 に示す。

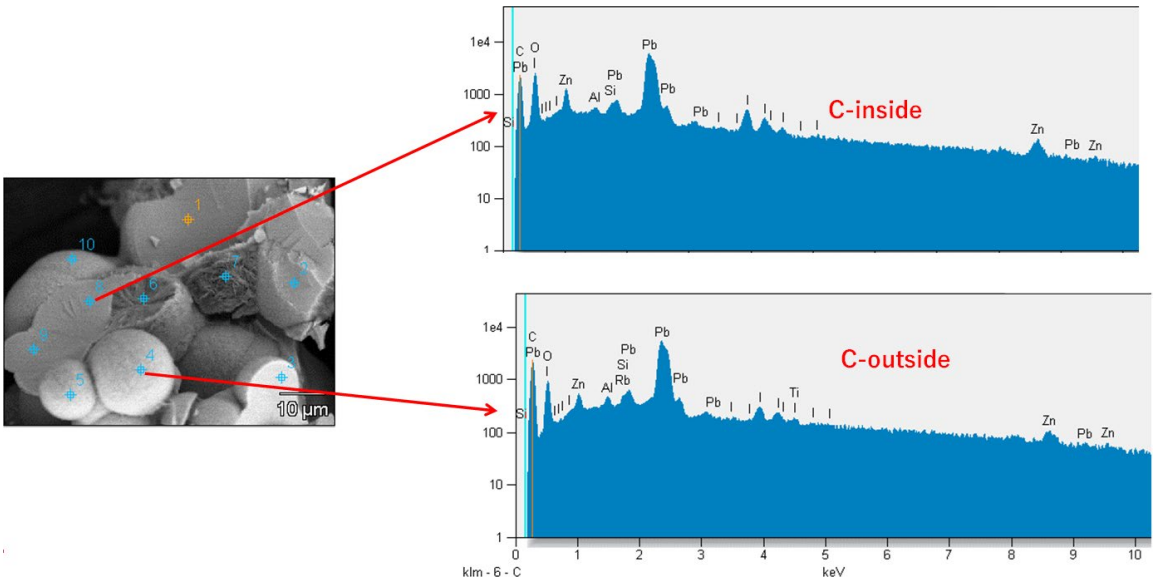


図 5-84　球状の 2 次鉱物の表面及び内部の EELS 分析の結果

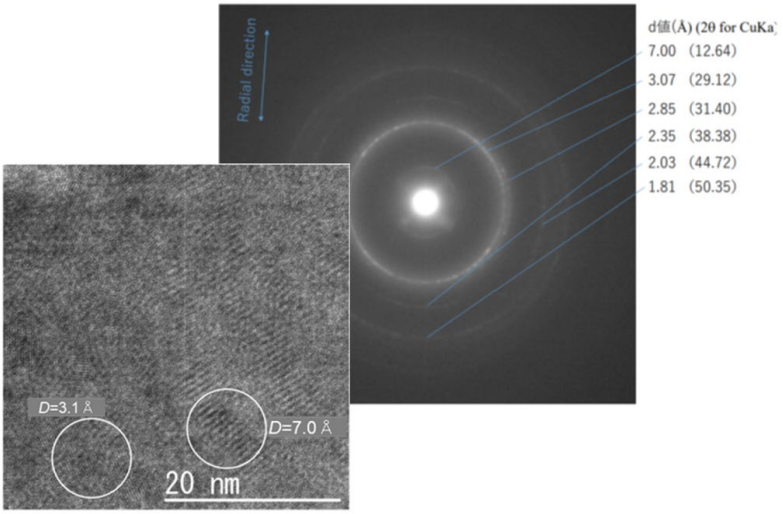


図 5-85　球状の 2 次鉱物の電子線回折の結果

図 5-86 の μ-XRD の結果を、**図 5-83** の XRD の結果と比較すると、LOCH の回折線と一致しないピーク（図中の▽）が複数検出され、それらのうちの多くが、$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ の回折線と一致することがわかった。

電子線回折によって確認された 7 Å 及び 3.1 Å の面間隔に対応する回折線も、この鉱物と一致すること、球状の鉱物がホウ素を含むことなど、$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ との共通点が多くあることが確認できた。

この$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ は、2020 年に Li らによって報告された鉱物（Li, 2020）であり、**図 5-87** の構造が提案されているが、詳細については不明である。また、d=2.29 Å を始めとする未同定の回折線が存在することなど、この相だけがヨウ素の濃集に関わると断定することはできないが、この相がヨウ素の濃集相であった場合の挙動を含め、これまでの浸漬試験でのヨウ素、ホウ素、及び鉛の濃度の推移等とあわせて、その長期的な安定性やヨウ素の放出の可能性について検討するとともに、他の鉱物相の可能性についても検討を加えていく必要がある。

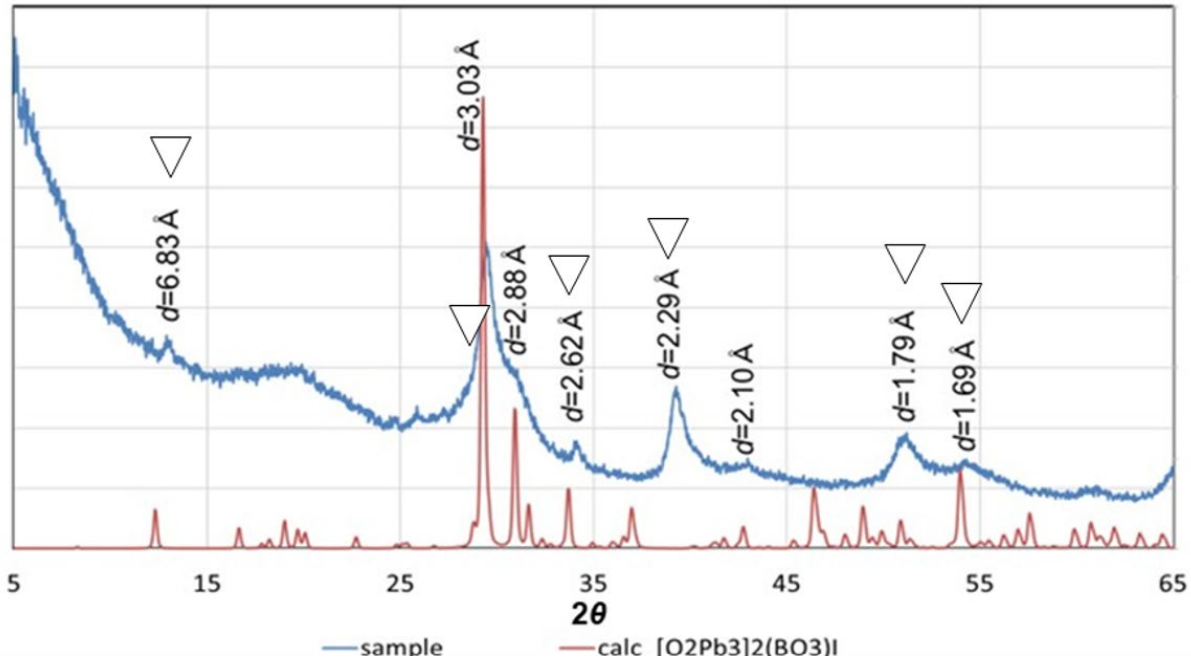


図 5-86 ヨウ素及び鉛を含む析出物の μ-XRD の結果
▽：LOCH では観察されない回折線

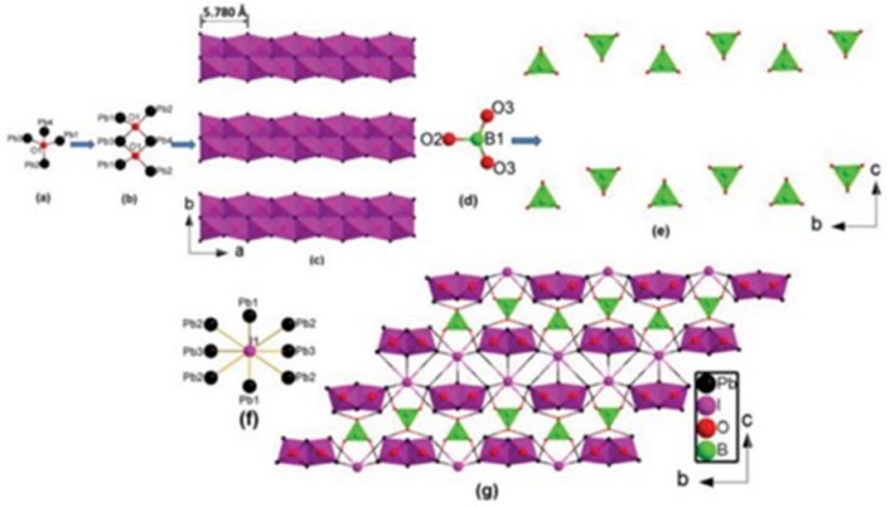


Fig. 1 Illustration of the crystal structure of $[O_2Pb_3]_2(BO_3)I$. (a) $[OPb_4]$ tetrahedron; (b) $[O_2Pb_6]$ dimer formed by two edge-sharing $[OPb_4]$ tetrahedra; (c) $^1_\infty[O_2Pb_3]$ double chains running down the *a*-axis with the $[OPb_4]$ groups represented by pink tetrahedra; (d) BO_3 triangle; (e) the arrangement mode of the BO_3 groups represented by green triangles viewing down the *a*-axis; (f) the coordination environment of the I atom; (g) the overall structure projected along the *a*-axis.

図 5-87（$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ の構造（Li,2020）

5.3.5. ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化の令和 5 年度の成果

令和 5 年度の本高度化における成果を以下にまとめる。

変質層と内部の健全なガラス相との間の微少な領域の非晶質層の分析結果から、

- 非晶質層内では構成元素の組成比の変化が観られないことから、ガラスの溶解が調和的に起きることを確認できた。
- また、非晶質相の厚さの変化や空隙の生成等が 1／2 乗則に従う原因となっていることを推定できた。

これらの成果によって、反応の継続性の説明ができる可能性がある。

また、ヨウ素の溶出が抑制的になる場合の 2 次鉱物の分析の結果

- ヨウ素を固定する 2 次鉱物として、$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ が候補としてあげられた。

この鉱物は近年報告されたものであるため、熱力学データ等が整備されていない。そのため、この鉱物の挙動についての推定方法を検討する必要がある。

また、他の鉱物がヨウ素の固定している可能性についても確認する必要がある。

参考文献

（5.1）

A. Uenishi, M. Suehiro, Y. Kuriyama and M. Usuda: IBEC'96, Automotive Body Interior & Safety Systems, Automotive Technology Group Inc., Michigan, USA. 89, 1996.

榎本, 平野, 望月, 黒澤, 斎藤, 林:“ウォータージェットピーニングによる材料表面の残留応力改善効果の検討”, 材料, 45, 7, 1996.

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書, JNC-TY1400 2005-013, FEPC TRU TR2-2005-2, 2005.

原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告書：我が国に於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ーケースの構築－, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 14 年度地層処分技術調査等　遠隔操作技術高度化調査 報告書, 2003

原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 16 年度地層処分技術調査等　遠隔操作技術高度化調査 報告書, 2005.

原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 17 年度地層処分技術調査等　TRU 廃棄物関連処分技術調査―人工バリア長期性能確証試験― 報告書, 2006.

原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 24 年度地層処分技術調査等事業　高レベル放射性廃棄物処分関連　処分システム工学要素技術高度化開発―人工バリア品質評価技術の開発― 報告書, 2013.

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　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書 ,2020.

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　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；令和 4 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書, 2023.

伊藤千浩, 有限要素法による余裕深度処分用容器の構造健全性評価, Civil Engineering Research Laboratory Rep.No.N08071.

J. S. Porowski, W. J. O'Donnell, M. L. Badlani and E. J. Hampton: “Use of the mechanical stress improvement process to mitigate stress corrosion cracking in BWR piping systems”, Nuclear Engineering and Design, 124, 1990.

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

MCMAHON, Matthew E. Review of residual stress impingement methods to mitigate environmental fracture susceptibility. Corrosion and Materials Degradation, 2.4: 582-602, 2021.

線形破壊力学入門, 岡村弘之, 培風館, 1976.

Shinji Tanimura, Masaki Uemura, Nobusato Kojima and Terumi Yamamoto,Recently Developed Testing Techniques and Dynamic Tensile Properties of Steel Sheets for Automobile, Materials Science & Technology, Conference Proceedings Volume I (AIST Proceedings), pp.481 – 490, 2004.

S. Tanimura, T. Tsuda, A. Abe, H. Hayashi, N. Jones, Comparison of rate-dependent constitutive models with experimental data, International Journal of Impact Engineering

69, 104-113, 2014.
末園, 前川, 元良：“原子力プラントの保守管理と BWR 保全技術”, 火力原子力発電, 52, 538, 2001.
TANIMURA, Shinji, et al. Dynamic tensile properties of steels and aluminum alloys for a wide range of strain rates and strain. Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 3.12: 1263-1273, 2009.
TANIMURA, S., et al. Comparison of rate-dependent constitutive models with experimental data. International Journal of Impact Engineering, 69: 104-113, 2014.
武智弘, 高橋学, 伊藤耿一, 遠藤孝雄, 友田陽, 自動車用鉄鋼材料の金属組織と高速変形挙動, 鉄と鋼 88 巻 11 号 p. 703-714, 2002.
田中保博, 梅本忠弘：“配管コンポーネント外面残留応力改善による応力腐食割れ”, 石川島播磨技報第 28 巻第 3 号, 1988.
津田徹, 阿部淳, 林寛幸, 谷村眞治. ネッキング発生後の 3 軸応力成分を含む準静的真応力-真ひずみ曲線の応力補正法の検討. In: 計算力学講演会講演論文集 2014.27. 一般社団法人 日本機械学会, p. 789-791, 2014.

(5.2)
電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書, JNC-TY1400 2005-013,FEPC TRU TR2-2005-2, 2005.
原子力発電環境整備機構, 包括的技術報告書：我が国に於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ーケースの構築－,2021.
原子力環境整備促進・資金管理センター；平成 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・処分技術高度化開発　報告書, 2020.
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　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書, 2023.
核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, TRU 廃棄物処分概念検討書, JNC TY1400 2000-001,TRU TR2000-01, 2000.
Idemitsu, K. and Sakuragi, T. Current Status of Immobilization Techniques for Geological Disposal of Radioactive Iodine in Japan, Mater. Res. Soc. Symp.Proc. Vol.1744,2015
Li,K. Yalikun,A. and Su,Z. [O2Pb3]2(BO3)I: a new lead borate iodide with $^{1}_{\infty}$ [O2Pb3] double chains, Dalton Trans,49,8985, 2020.
稲垣八穂広, ガラス固化体の長期鉱物化に関する研究（Ⅳ）, JNC TJ8400 2004-019, 2005.
Kodama, H., Dyer, A., Hudson, M. J., Williams, P. A., Progress in Ion Exchange, The Royal Society of Chemistry, Cambridge, UK, 39, 1997.
Kodama, H. and Kabay, N., Reactivity of Inorganic Anion Exchanger $BiPbO_2NO_3$ with Ions in Solution, Solid State Ionics 141-142, 603-607, 2001.
Kuan Li, Alimujiang Yalikun and Zhi Su, $[O_2Pb_3]_2(BO_3)I$: a new lead borate iodide with [O2Pb3] double chains, Dalton Transactions, Vol.49, 8985-8990, 2020.
原子力環境整備促進･資金管理センター：平成 19 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　報告書（第 1 分冊）, 2008.
原子力環境整備促進･資金管理センター：平成 20 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　報告書（第 1 分冊）, 2009.

原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 21 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　報告書（第 1 分冊）, 2010.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 22 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　報告書（第 1 分冊）, 2011.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 23 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　報告書（第 1 分冊）, 2012.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 24 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　報告書（第 1 分冊）, 2013.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 24 年度 地層処分技術調査等　TRU 廃棄物処分技術　ヨウ素・炭素処理・処分技術処理・処分技術開発　平成 19 年度～平成 24 年度の取りまとめ報告書, 2013.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 25 年度 地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書（第 1 分冊）―ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上―, 2014.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 26 年度 地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書（第 1 分冊）―ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上―, 2015.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 27 年度 地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書（第 1 分冊）―ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上―, 2016.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 28 年度 地層処分技術調査等事業　TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発　報告書（第 1 分冊）―ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上―, 2017.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 29 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書（第 1 分冊）―ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上―, 2018.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 30 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発，2019.
原子力環境整備促進・資金管理センター：平成 31 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業　ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発，2020.
原子力環境整備促進・資金管理センター：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，2021.
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　ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発，2022.
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　ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発，2023.
原子力発電環境整備機構，包括的技術報告書レビュー版：わが国における安全な地層処分の実現 付属書 3-31，NUMO-TR-18-03, 2019.
Krogh-Moe, J., and Wold-Hansen, P.S., The crystal structure of hexalead pentaborate,6PbO.5B2O3, Acta Cryst B 29, 2242–2246, 1973.
Mukunoki, A. and Chiba, T., Development of an Iodine Immobilization Technique by Low Temperature Vitrification with $BiPbO_2I$, ICEM07-7142,2007.
動力炉・核燃料開発事業団：実規模ガラス固化体の浸出試験，PNC TN8410-90-068, 1990.
Rawson, Inorganic Glass-Forming Systems. Academic Press Inc., 1967.

Sun, Q. Berkelbach, T.C. Blunt, N.S. Booth, G.H. Guo, S. Li, Z. Liu, J. McClain, J.D Sayfutyarova, E.R. Sharma, S. Wouters, S and Chan, G.K-L. PySCF: the Python-based simulations of chemistry framework, WIREs Comput. Mol. Sci. 8, e1340, 2018.

鈴木賢紀, 丸山茂宏, 梅咲則正, 山岸弘奈, 太田俊明, O K 吸収端 XANE S を用いた、水酸基を有する微細孔ガラスの表面領域における酸素イオン配位構造の調査, 立命館大学総合科学技術研究機構 SR センター 成果報告書, S18014, 2018.

Takaishi, T., Jin J., Uchino, T., Yoko, T., Structural Study of PbO-B2O3 Glasses by X-ray Diffraction and 11B MAS NMR Techniques, J. Am. Ceram. Soc., vol.83, No.10, pp.2543-48, 2000.

Zhang, F. Zhang, F. Lei, B.H. Yang, Z and Pan, S., Synthesis, Characterization, and Theoretical Studies of (Pb4O)Pb2B6O14: A New Lead(II) Borate with Isolated Oxygen-Centered Pb4O Tetrahedra and Large Second Harmonic Generation Response, J. Phys. Chem. C 120, 23, 12757-12764, 2016.

6. 結言

本事業では、先行事業「ニアフィールドシステム評価確証技術開発」（原子力機構・原環センター, 2023）および「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」（原環センター・原子力機構, 2023）で得られた成果と抽出された課題を踏まえ、以下（1）～（4）に示すサブプロジェクトを設定し、各現象の理解の深化、現象解析モデルの開発、長期挙動や相互作用のモデル化や評価手法・手順の構築などを通じて、処分システムの過渡期から長期にわたる状態変遷評価手法の高度化を行った。

（1） ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化
①ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化
②熱ー水ー応力ー化学連成現象評価モデルの確証
（2） 熱影響評価技術の高度化
①ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析
②幌延地下施設での 100 °C 超条件における原位置試験
③100 °C 超を含む温度条件における緩衝材特性の評価
（3） ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化
①ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発
②水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化
（4） 人工バリアの閉じ込め機能の高度化
①廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発
②ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化

令和５年度に得られた主な成果を以下 6.1～6.4 に記す。

6.1. ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化

6.1.1. ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化

(1) 緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価

自己シール試験のための試験環境整備と、膨潤特性に関連するベントナイト試料の基礎物性を得るため、Na 型ベントナイト（KV）の土粒子の密度、鉱物組成、化学組成、浸出イオン量、メチレンブルー吸着量を測定した。浸出イオン量からはモンモリロナイトの層間陽イオン組成を、メチレンブルー吸着量からはモンモリロナイト含有率を評価した。また、供試体の乾燥密度分布を把握するため、部分的に切り出した試料の体積と乾燥質量から乾燥密度を求める方法を検討した。

(2) 炭素鋼-ベントナイトの相互作用

「超長期試験」について、試験前後の質量変化から炭素鋼試験片の腐食量を評価するとともに、炭素鋼試験片表面の X 線回折分析により腐食生成物の種類を同定し、既存データと一致することを確認した。また、電子顕微鏡を用いた断面試料の観察により、腐食生成物層の厚さを把握するとともに、腐食生成物層が複数種の生成物からなること、モンモリロナイトの他の鉱物への変質は認められないことなどを確認した。

(3) セメント-ベントナイトの相互作用

HFSC/クニゲル V1 の接触試験体を 80 °C で 4 年間反応させた試料について分析を実施した。

ベントナイト側の変質はイオン交換以外にほとんど確認されず、セメント側で構成元素等の溶脱が確認された。また、過年度に分析した 50 °C、試験期間 3 年の試料との比較により、セメント側の変質の程度は、試験温度が高いほど大きいことを確認した。先行事業で開発したモデルの改良版による反応輸送解析の結果、界面近傍のセメントの変質状態は定性的に再現できるものの、定量的な再現には熱力学データの温度依存性の把握などが必要であることを確認した。

(4) セメント変質

80 °C における OPC の水和と初期変質を模擬した試験と再現解析から、室温における OPC の水和や変質とは鉱物組み合わせが異なること、C-S-H 鉱物であるアフィライトの熱力学データが必要であること、セメント-ベントナイトの相互作用の理解を進める上で、高温条件での OPC の変質、HFSC の水和と変質に関する情報をさらに拡充していくことが必要であることを確認した。また、高温条件でのセメント変質における鉱物変遷の理解をする上で役立つと考えられる 11 Å トバモライトと 14 Å トバモライトの熱力学データを取得した。幌延地下水を用いた HFSC の劣化を模擬した室内試験では、炭酸イオンによる変質が優勢であることを確認した。さらに、幌延深地層研究センター地下施設の 350 m 調査坑道に定置された HFSC 供試体および実際の坑道に施工された HFSC 吹付けコンクリート（支保工）を採取し、それらの物性や化学特性を把握するための試験・分析を実施した。その結果、中性化の進行やそれらに伴う物性・空隙構造等の変化を確認した。特に吹付けコンクリートについては施工時のばらつき等の影響も示唆された。

(5) 坑道周辺の環境状態の変遷

岩石の力学的挙動の長期変化に資するデータの取得およびその取得手法の構築を目的として、幌延深地層研究センターの深度 350 m で採取した岩石試料を用いて、載荷速度を変化させた一軸圧縮試験を実施し、既往モデルの適用を試みた。岩石を風乾させることにより飽和度 70%程度までは、亀裂等発生することなく飽和度を調整できることを確認し飽和度を制御しながら一軸圧縮試験を実施する手法を確立した。飽和度が 100%の試料と 70%の岩石試料に対し、5 段階の載荷速度で一軸圧縮試験を実施した。この試験では、載荷速度が速いほど一軸圧縮強さが高く、また飽和度が 70%の場合の方が一軸圧縮強さが高くなることを確認することができた。

6.1.2. 熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの確証

(1) ニアフィールド長期力学解析手法の高度化

熱－水－応力－化学連成現象評価モデルの確証として、幌延人工バリア性能確認試験を対象に緩衝材の再冠水挙動に着目した THC 連成解析を実施した。その結果、廃棄体を模擬したヒーターによる加熱期においては、緩衝材内側では水分が低下し乾燥状態が維持された。その後の減熱期では、温度勾配が小さくなることで緩衝材内側の水分が増加に転じ、約 6300 日後に緩衝材全体が飽和する予察結果を得た。また、処分施設の力学挙動を化学及び物質輸送と連携して評価する長期力学挙動解析コードの 3 次元版 MACBECE の開発では、プログラムの骨格部分を完成させるとともに、先ずは線形弾性体として動作するプロトタイプモデルを開発した。そして、3 次元化のために必要となる高速ソルバーの導入や計算の並列化などの開発方針について整理を行った。

(2) 人工バリア性能確認試験の遠心力加速模型実験による長期現象理解と数値解析の高度化

参画する幌延国際共同研究プロジェクト（HIP）のスケジュールを念頭に、本事業の研究計画を策定した。また、THM 連成解析コード「放射性廃棄物地層処分における地下空洞長期安定性解析プログラム（LOSTUF)」に入力するパラメータを整理し、追加取得が必要な、熱伝導率、比

熱、熱膨張係数について、その温度依存性のデータを取得した。計測試料は、岩石（稚内珪質泥岩）、緩衝材、埋戻し材であり、乾燥および湿潤（飽和度 80%目安）状態で測定した。結果は、温度依存性を有し、試料作成時のばらつきや、乾燥／湿潤状態による影響が認められた。

6.1.3. ニアフィールド状態変遷評価技術の統合とニアフィード核種移行評価への反映

本課題では、「ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化」および「熱－水－力学－化学連成現象評価モデルの確証」の個別の成果ならびに「熱影響評価技術の高度化」、「ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化」、「人工バリアの閉じ込め機能の高度化」の成果について、ニアフィールド状態変遷評価技術への統合を目指した検討を進める計画である。また、この取り組みを通じて統合化された成果のうち、核種移行で着目すべきニアフィールドの状態変遷や取り扱いなどの知見は、別事業として進められている「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「ニアフィールドにおける核種移行総合評価技術の開発」（以下、NF 核種移行評価）での活用を目指す。令和 5 年度は、本課題および「熱影響評価技術の高度化」で得られる成果について、核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容、核種移行シナリオでの取り扱いの見通し、核種移行評価への反映と時期の 3 つの観点で整理した。

6.1.4. まとめと今後の課題

(1) ニアフィールド構成材料間で生じる複合現象の理解と評価技術の高度化

緩衝材の自己シールによる隙間充填部位の安定性評価では、今年度は試験環境の整備、および評価手法の検討を行った。この検討をもとに、次年度からは、自己シール試験を実施するとともに、試験前後の試料及び供試体の基礎物性や乾燥密度分布を調べる予定である。今後、様々な隙間量、供試体仕様、水理・水質などの条件のもと、自己シール試験のデータを取得し、さらに自己シールした時の物理化学的な状態についての知見を取得することは重要と考えられる。炭素鋼-ベントナイトの相互作用およびセメント-ベントナイトの相互作用については、透過型電子顕微鏡などを活用した界面領域の観察･分析により、相互作用に関する知見を取得することができた。今後、短期試料の分析や変質状態の評価に必要となる詳細分析を進める。セメント変質については、幌延の深部地下水を用いた室内試験と地下施設に定置した水中養生コンクリートの分析のいずれにおいても炭酸イオンの影響によるカルサイトが沈殿したが、吹付コンクリート試料については地下水との接触部でカルサイトの沈殿がないという違いを確認した。また、吹付コンクリートの変質に伴う物性の変化については、空隙の分布など施工上のばらつきの影響もあり、今後、ばらつきの影響を考慮した評価を進める。坑道周辺の環境状態の変遷については、坑道埋め戻し後の坑道周辺の環境の変化を評価する際に必要となる岩石強度の飽和度依存性データの取得に向け、飽和度を 70%まで変化させた条件で試験する手法を確立させることができた。今後、より低い飽和度を含め、様々な飽和度でデータを取得し、岩石強度の飽和度依存性に関する系統的なデータを取得する。

(2) 熱－水－力学－化学連成現象評価モデルの確証

COUPLYS による幌延人工バリア性能確認試験を対象とした THC 連成解析により、緩衝材内の飽和度の時空間分布を把握した。今後は、計測されている浸潤挙動に関するデータとの比較を通じ、COUPLYS の適切性を確認していく。MACBECE の開発については、3 次元版のプロトタイプを作成するとともに、計算負荷の軽減に向けた準備を進めた。また、人工バリア性能確認試験の遠心力加速模型実験による長期現象理解と数値解析の高度化では、HIP において令和 7 年度から開始される幌延人工バリア性能確認試験を対象とした数値解析が開始される。それに合わせ

本事業では、令和 6 年度では LOSTUF を用いた試解析と、遠心力模型実験の計測確認試験を行い、令和 7 年度開始の HIP タスクに備え、遅延なく準備を進める予定である。

(3) ニアフィールド状態変遷評価技術の統合とニアフィード核種移行評価への反映

「ニアフィールド状態変遷評価技術の高度化」および「熱影響評価技術の高度化」で得られる成果について、本事業での各実施項目に対して核種移行評価の観点からの不確実性と実施内容、核種移行シナリオでの取り扱いの見通し､核種移行評価への反映と時期の 3 つの観点で整理した。本事業の各実施項目は様々な視点で課題設定されており、今後、核種移行評価への受け渡しにあたり、例えばニアフィールド構成要素（界面を含む）との関連づけを行うなど共通的な視点で再整理する必要がある。

6.2. 熱影響評価技術の高度化

6.2.1. ニアフィールドの温度分布を把握するための熱伝導解析

緩衝材内の 100 °C 超領域等のニアフィールドの温度分布を把握するため、NUMO-SC の深成岩類・先新第三紀堆積岩類、貯蔵期間 30 年のガラス固化体、横置き PEM 方式の熱伝導解析の事例を対象に、処分坑道中心間距離を解析ケースとした熱伝導解析を実施した。最高温度が最も高いケース（坑道中心間距離：16 m、廃棄体定置間隔：3.356 m）では、約 11 年で緩衝材内の温度が最高温度（約 114 °C）に達し、その際の 100 °C を超える領域は 250 mm 程度であった。また、100 °C 以上の期間が 50 年程度継続した。

6.2.2. 幌延地下施設での１００℃超条件における原位置試験

幌延地下施設の 350 m 調査坑道において 2 つの既設の試験孔にそれぞれ模擬オーバーパック、緩衝材、計測センサーを設置した。緩衝材は外径 500 mm、内径 100 mm、高さ 100 mm のドーナツ型のブロックを 12 段積み上げる形で施工し、高温下での乾燥収縮によるクラック発生に影響する因子としてブロックの形状（ドーナツ 1 体成型と扇形 2 個に分割成型）と初期含水比を変えた条件での試験とした｡今年度は模擬オーバーパックの温度 140 °C での加熱を開始して温度、水分分布等データ取得に着手した。

6.2.3. １００℃超を含む温度条件における緩衝材特性の評価

100 °C 超を含む高温条件下における緩衝材の変形挙動および膨潤挙動を把握するための室内試験を実施した。圧密試験では、載荷圧が一定の条件下において 80 °C 程度までの温度変化を与えた際の変形量を測定し、変形挙動が過去の応力履歴に依存することや、間隙比－載荷圧の関係について温度による影響を確認した。膨潤挙動については、140 °C までの温度条件で膨潤圧を測定し、これまでに得られている結果と合わせて整理を行い、100 °C 超を含めて温度が高いほど膨潤圧が大きくなることを確認した。また、100 °C を超える熱履歴が緩衝材に及ぼす影響を把握するための試験手法を検討しデータ取得を開始した。そして、乾燥収縮によるクラックの発生状態や、水を浸潤させることでクラックが閉塞する様子を CT 画像で確認した。さらに、水の浸潤にともなって発生する膨潤圧を測定した結果、熱履歴を持たない場合に比べて 30%程度大きくなることや、クラックが閉塞した後の透水係数を測定した結果からは止水性への影響が小さいことを確認した。

6.2.4. まとめと今後の課題

NUMO-SC における処分場設計をベースとした熱伝導解析結果から、緩衝材の制限温度を考慮

しない場合の緩衝材の温度の目安として、100 °C を超える場合の温度上昇の幅は数 10 °C 程度以内であり、室内試験や原位置試験で設定した温度はこの温度条件を概ね包含していることが確認された。また、今回の試験条件の範囲では緩衝材が熱履歴を受けた場合であっても、温度が低下して再冠水した後の緩衝材の特性に対して安全機能上問題となる影響は見られないことが確認された。今後は今回と異なる処分方式を含めて多様なケースでの熱伝導解析を実施して緩衝材が 100 °C を超えるケースでのニアフィールドの温度分布と時間変化を把握する必要がある。また、温度、水質等の多様な試験条件に対して室内試験データを拡充し、熱履歴による安全機能への影響を広範な条件に対して把握するとともに、原位置での工学規模でのデータを取得し、100 °C 超の熱履歴を受けた緩衝材に生じる現象理解を進めることが重要となる。さらに、現象理解に基づいて熱履歴による自己シール性等の緩衝材の安全機能への影響についてニアフィールドの核種移行評価における扱いの設定等に資する知見として整備することが課題として挙げられる。

6.3. ガス発生影響低減技術・評価技術の高度化

6.3.1. ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発

ガス発生量低減のための廃棄物固化処理技術の開発では、TRU 廃棄物のうち特にグループ 4H に分類される発熱量の大きい廃棄物の代替固化処理において有効なガス発生量低減対策を示すことを目的として、代替固化処理技術の実現に見通しをつけ、発生ガスによる閉鎖前の安全性低下のリスクを低減させる成果目標の達成に向けた検討を実施した。成果を以下にまとめる。

(1) 代替固化処理技術の対象となる固型化材料の選定

TRU 廃棄物のうち特にグループ 4H に分類される発熱量の大きい廃棄物の代替固化処理技術の開発においては、既存の技術を改良して適用可能性を検討することとし、その候補材料を選定した。高発熱性の廃棄物のため熱影響が懸念されるもの、高い表面線量のために放射線分解が懸念されるもの、固化体の製造時のハンドリングや品質管理が難しいものは除き、大型の固化処理プラントの必要がなくセメント固化と同等の設備で固化処理が可能なジオポリマー固化及びセメント固化を対象とすることとした。

これらの二つの固化方法において、各固化処理技術に用いる固型化材料の基本特性に基づき、ガス発生量が低いもの、あるいはガス発生量の低減のため固化処理技術の改良の方向性が明確な特徴を有している固型化材料を選定し、以下の 5 種類の固型化材料を選定した。

ジオポリマー固化

・無機添加剤含有ジオポリマー
・分散剤添加高炉スラグジオポリマー
・乾式ジオポリマー
・メタカオリン系ジオポリマー

セメント固化

・高強度高緻密コンクリート

この代替固化技術の開発においては、強度や流動性をある程度保ちつつ、いかに放射線分解に寄与する固化体中の水分量を減らせるかという観点で現状の固型化材料による固化技術を改良することとした。今年度は、選定した各固型化材料のうち次年度以降に検討を予定しているメタカオリン系ジオポリマーを除く 4 種類の固型化材料を対象として、放射性分解ガス低減化のための固化処理技術の改良、ガス発生挙動に係る物性データの取得を実施し、ガス発生量低減化のための改良ポイントを整理した。

(2) 無機添加剤含有ジオポリマー

無機添加剤含有ジオポリマーは、無機添加剤としてホウ酸を添加することで、添加していない固型化材料と比較して､混練開始から混練物に流動性がなくなるまでの低粘度を維持する時間(可使時間）を長くできるだけでなく、固化体の水素発生を低くできることを確認しており、添加剤や骨材等の配合の検討により固型化材料の更なる改良が期待できる固型化材料である。

EGA-MS 分析から、セメント試料は 400℃付近で Ca(OH)2 が分解することから間隙水は自由水と結合水として存在しているのに対し､ジオポリマー試料は全て自由水であることを確認した。また、固化体の照射試験から、無機添加剤としてホウ酸を添加したジオポリマー試料からの水素発生量は、添加していないものより小さくなることが確認できたが、今回の固化体の含水率が高かったため水相の直接影響が強く出てしまい、固相からの間接影響によるガス発生量の低減幅は小さかった。

無機添加剤含有ジオポリマーの改良のポイントは、骨材を多孔質の材料に変える等により、中心部からの脱水経路確保することによる乾燥効率化や、乾燥処理の速度等の乾燥処理の条件の最適化を図ることによる固化体中の自由水として存在する水相の低減と、無機添加剤の種類や量を調整した軽元素のジオポリマーの配合の検討や、温度や雰囲気の制御によるジオポリマーの微細構造（比表面積等）の物性を変化させることによる固相の電子密度の低減である。

(3) 分散剤添加高炉スラグジオポリマー

分散剤添加高炉スラグジオポリマーは、粒子分散効果のある混和剤（添加剤）によって硬化前の流動性と保持性を高め、水以外の方法で反応を制御し、混練水の添加量の抑制が可能なことから、放射線分解ガスの低減につながる固化体中の含水率の低下が見込める固型化材料である。

配合を変えた固化体の含水率の測定から、フライアッシュより高炉スラグをより多く配合した試料の方が含水率が低くなる傾向があり、高炉スラグ多配合の含水率は養生期間 28 日で 6～7%であり、28 日の養生期間において 2～4%程度含水率が低下していることを確認した。また、機械的強度については、打設後 7 日間で一軸圧縮強度が 10 MPa を超えていた。流動性については、フロー試験の結果、混錬後 30 分以上、フロー値 150 mm 以上の高い流動性を持つものが多い。このことから、流動性や強度には余裕があり、固化体の含水率低減の改良において、これらが大きな障害にはならないことが予測される。

分散剤添加高炉スラグジオポリマーの改良のポイントは、自然乾燥/加温乾燥等の乾燥方法によらず、高炉スラグの配合比を増やすことや混錬水を減らすことによる配合の最適化である。

(4) 乾式ジオポリマー

アルカリ刺激剤に水和物を含む粉末を用いることで(混練)水の添加を抑制することができる。ジオポリマーはセメントの水和反応と異なり脱水縮合するため、原理上、硬化するための水が不要となることから、ガス発生量低減の観点で放射線分解に寄与する固化体中の水分量も減らせる可能性がある固型化材料である。

固化体の含水率の測定から、3 日間の加熱後大気養生した条件での含水率は養生期間 28 日で 17.6%であり、湿式のジオポリマーと比べると含水率がかなり高い。また、養生期間は吸湿により含水率が上昇していることを確認した。

乾式ジオポリマーの改良のポイントは、配合に自由度があまりないため、乾燥処理により固化体の含水率を低減させることである。

(5) 高強度高緻密コンクリート

高強度高緻密コンクリートは、水和反応に寄与する粉体の量に対する水量が非常に少ない。水結合材比を水和反応の限界付近まで低くしていることで、空隙を極限まで抑えた最密充填により組織は高緻密となり、超高強度を実現している。そのため、一般のコンクリートように乾燥工程を設けなくても硬化後の自由水量が少なく、ガス発生量の低減が見込めるセメント系の固型化材料である。

固化体の含水率と水和反応について、養生期間 7 日程度までは水和反応が比較的速い速度で進行しており、その後の水和反応はゆっくりと進行しているものと考えられる。また、養生期間の経過に伴う水和の進行により、高強度高緻密コンクリート中の間隙径は小さくなる傾向が認められた。一方で、照射試験から、水素ガス発生量は、形状の小さい試料では OPC 系材料の自由水量とガス発生量の相関関係に近い値となった。試料サイズの違いによって、水和の進展や水和による構造の緻密化が自由水量や水素ガス発生量に影響している可能性がある。

高強度高緻密コンクリートは、現状でガス発生量が少ないデータが得られていることから、配合の変更や乾燥工程の検討等の基本的な固化処理技術の改良は予定していない。一方、水和挙動や細孔構造の違いがガス発生量に影響している可能性が考えられるが、そのメカニズムが現状では十分解明されていないため、ガス発生量が少ない要因を明らかにして、ガス発生量が少ない固型化材料であることを示すための検討を今後も進める。

(6) 今後の課題

5 か年計画の前半では、今年度選定した固型化材料を対象として、放射線分解によるガス発生量を削減するために、固化性能を保ちつつ放射線分解に寄与する固化体の含水率を削減する改良を各固型化材料の改良のポイントに基づいて実施し、各固型化材料の性能を確認する。その上で、5 か年計画の後半の課題として見込みが得られた固型化材料を対象に、廃棄物の充填固化を想定した工学試験等を実施して、TRU 廃棄物の固化処理への適用性を評価する予定である。

6.3.2. 水理-力学連成を考慮したガス移行評価技術の高度化

今年度は、水理-力学連成を考慮したガス移行解析モデルの高度化に向けたデータの収集・分析および得られた知見を反映してのガス移行モックアップ試験の予測解析を実施し、モックアップ試験体の製作から再冠水過程までモックアップ試験を実施した。

収集したデータの分析結果の解析手法への反映として、力学連成二相流解析コードである CODE_BRIGHT の有する「Fracture aperture model（亀裂開口幅依存絶対浸透率モデル）」やモデル領域内に不均質性を考慮できる機能を活用し、解析モデルの各部にこれら機能を個別に反映したいくつかの解析ケースを設定した。解析結果を比較することで、水・ガス移行特性や供試体からの排水量への諸現象の影響の程度や解析手法の適用性を確認した。しかし、解析結果は計算が不安定で予測解析が困難となり、計算の安定性向上のための同モデルの適用性改善は今後の課題である。また、供試体へのガス注入に緩やかな昇圧ステップを設定したケースも実施し、ガス圧載荷が低減することで変形が抑えられ、変形に起因する排水量が低減し気液二相流による排水が支配的となる結果が得られた。より現実的なガス圧の上昇を試験条件に反映するためにも、ガス移行モックアップ試験においてガス注入時の緩やかな昇圧ステップの設定を今後検討する。

処分場での安全性を説明するためにもモックアップ試験によって実現象に近い自己修復性の知見を積み上げることは重要である。今年度は、モックアップ試験体の製作から再冠水過程までモックアップ試験を実施し、飽和の進展を確認した。再冠水過程では、供試体への注水挙動及び供試体からの排水挙動の順調な推移と供試体各面の土圧計測定値がほぼ同一の増加を示しているこ

とを確認した。このことから、供試体の吸水に伴う膨潤圧の発達および各部とも概ね均質に飽和へ到達していると判断した。

砂やシルトを含む粘土における透過性を NPT Monte Carlo 解析により再評価した。解析結果は clay fraction の増加にともない低空隙率、高透過率領域から高空隙率、低透過率領域への推移となり、実験結果と定性的な傾向が一致したことから、NPT Monte Carlo 解析の適用性が確認できた。また、砂の構造解析から数値的に求めた空隙特性量について空隙率をパラメータとしモデル化した。

6.4. 人工バリアの閉じ込め機能の高度化

6.4.1. 廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発

人工バリアの構成要素の一つである廃棄体パッケージの閉じ込め性能とは、閉鎖前の安全性が担保されたうえで、閉鎖後長期の安全性が成り立つものと考えた場合、本事業（ニアフィールド長期環境変遷評価技術開発）においても重要な課題であり、廃棄体パッケージの閉じ込め性能の向上を図ることで、人工バリアの閉じ込め機能の高度化に繋がる。

このような目標を掲げ、廃棄体パッケージの閉じ込め性能向上に係る技術開発を令和 5 年度より開始した。

(1) 後充填方式によるセメント系パッケージ内充填材の開発

高強度高緻密コンクリートの充填性を把握するため、高性能減水剤の添加量をパラメータとしてフロー試験を実施し、流動性と材料分離抵抗性のバランスの良い配合を見出し基本配合とした。流動障害を設けた模擬試験体での充填性試験では、基本配合の水準では、いずれもパッケージ内充填材として問題なく使用できる見通しを得た。

(2) 実規模廃棄体パッケージ溶接部の健全性評価

実規模廃棄体パッケージの溶接部から採取した試験片による引張試験の結果から、蓋溶接部の母材及び胴板の突合溶接部の母材はともにミルシートの値に比べ引張強さが低い傾向が確認でき、いずれも PWHT 施工確認試験での過度な熱履歴に起因している可能性がある。今後の製作技術に反映できる留意点として、実規模廃棄体パッケージに使用した鋼材 SM570 は TMCP 鋼であり、一般に TMCP 鋼は、制御圧延と加速冷却を用いて強度と靭性を確保しているため、PWHT の実施に関しては、その効果を消失させる懸念があることを念頭に置き、厳密に保持温度を管理する必要がある。また、PWHT において保持温度上限を目標値としたい場合には、予め軟化することを見込んで材料を選定した方がよい。

溶接部の健全性を評価するためには、腐食試験のデータや材料変質部位のミクロ組織や硬さ試験など、さらに詳細なデータを得た上で考察することが課題である。

(3) 異常事象に対する安全性向上に係る検討

実規模廃棄体パッケージの蓋溶接部から製作した試験片による高速引張試験により、製作工程を経た状態の溶接部のデータを取得し、この結果を基に T-M2009 モデルのパラメータを算出し、現実的な材料モデルを作成した。この材料モデルを適用して、実規模廃棄体パッケージを模した解析モデルによる落下解析を 2 ケース実施し、共に蓋溶接部の延性破壊の可能性は低く、落下時においては脆性破壊が支配的となることを確認した。

残された課題を以下に挙げる。

・引張試験の再現解析結果でのネッキング開始後の多軸応力状態から単軸への補正

・溶接部に熱影響部層もモデル化し、熱影響部での破断の可能性を検討
・破壊靭性値を取得し溶接部の脆性破壊を評価

また、プレキャスト方式によるパッケージ内充填材を搭載する廃棄体パッケージについては、製作コスト低減のため内容物の固縛方法の簡素化も課題の一つである。そのため、落下時の容器内部で生ずる 2 次衝突の影響についても、精査する必要がある。

(4) 表面改質による SCC 対策技術の整備

オーバーパックでの残留応力緩和技術に関する既往の検討結果を参照し、表面改質による残留応力改善方法の有用性をまとめたうえで、バニシングが候補に挙げ施工イメージを提示した。

さらに、その付随効果として、実規模廃棄体パッケージの製作で得た留意点を反映でき、かつ廃棄体パッケージの封入工程（蓋溶接－非破壊検査－残留応力改善）の合理化が図れることを提案した。情報収集と試験計画の策定の具体化が今後の課題である。

6.4.2. ヨウ素代替固化体の評価技術の高度化

令和 5 年度は、ヨウ素の溶出に係る固化体の溶解の素反応である、BPI ガラスの水和溶解と、ホウ素、鉛及びヨウ素の溶解反応が調和的に起きること、およびその反応が長期的に継続することを示すことを目的に、①溶解フロント近傍の構造の取得、②ガラス構造に基づいた BPI ガラスの水和・溶解挙動のモデル化の 2 項目を実施した。また、地下水のイオン強度が低く、かつ炭酸塩濃度が希薄な、稀な環境ではあるが、要素と鉛とを含む 2 次鉱物の析出によって、ヨウ素の溶出割合がホウ素のそれに対して非調和的になるケースについて、③非調和溶解時に生じる鉛及びヨウ素を含む 2 次鉱物の分析を実施した。

(1) 溶解フロント近傍の構造の取得

内部の健全なガラス層と、固化体表面に生じた 2 次鉱物との間に生じた非晶質相（原環センター, 2023）の組成の分布を詳細に分析したところ、この相の組成は内部の健全なガラス層と同等であり、また、各項税元素に明確な分布や勾配が見られないことが明らかになった。

このことは、BPI ガラスと地下水（浸漬液）との反応が特定のガラス成分との間で優先的に起きることがなく、調和的な反応であることを示している。また、この相でガラス層の組成が一定であることは、ガラスの溶解に伴う物質の移行が（時間）$^{0.5}$ に従う原因が、この相の濃度勾配にではなく、この層の厚さや、ガラスの溶解によって生じた微細なボイドを通じた移行である可能性を示すものと考えられた。

今後、この相の厚さの変化や、ボイドの分布や大きさ等を調べていくことで、この仮説の成否を確認していく必要がある。

(2) ガラス構造に基づいた BPI ガラスの水和・溶解挙動のモデル化

令和 5 年度は、これまでに構築および最適化してきたガラスの微細構造モデルに基づいて、BPI ガラスの溶解および 2 次鉱物の析出等に伴うヨウ素の放出挙動を理論的に解析するための方法論の提案、及び解析に必要となる原子間ポテンシャルの導出に係る理論計算に基づくエネルギー計算を実施した。

また、(1) で今後得られる成果等を合わせて非晶質変質層の組成（あるいは、濃度勾配も含めた傾斜組成）が明らかにされたものと仮定し、ヨウ素放出現象の理論的説明に必要となる 2 項目、ガラス／非晶質変質層の界面反応、非晶質変質層中の物質移動について検討するための計画を策定した。

(3)　非調和溶解時に生じる鉛及びヨウ素を含む 2 次鉱物の分析

地層処分では稀な環境と考えられるが、地下水のイオン強度が低く、かつ炭酸塩濃度が希薄な環境で生じた、ヨウ素及び鉛からなる相が生じた場合でも、ヨウ素の溶出がホウ素のそれに対して調和的な環境でのそれに対して大きくならないことを確認し、BPI ガラスの長期性能を確認すること、及びその適用範囲を確定させることを目的とし、2 次鉱物の詳細分析を実施した。

その結果、この相が$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ である可能性が示された。この鉱物は近年発見されたものであるため、その溶解度や溶解速度等が不明であるため、この相の安定性や、環境変化による分解、ヨウ素の溶出についての検討が必要である。また、他の鉱物相である可能性についての確認も必要である。

(4)　令和 5 年度までの本高度化で得られた成果

令和 5 年度の本高度化によって、BPI ガラス固化体からのヨウ素の溶出に係る、溶解反応が、ガラス表面で調和的に起きることが示されるとともに、非晶質相での物質移行が固相の濃度勾配によるものではなく、ボイドの分布や非晶質相の厚さの変化によって（時間）$^{0.5}$ に従う可能性が示された。このことは、4.3.2 項で記載したヨウ素の溶出過程（図 5-59）のうち、水和・溶解と各成分の溶出に係る素反応の継続性を示す根拠となるものと考えている。

また、BPI ガラスの水和・溶解挙動のモデル化においては、これまでに高度化してきたガラスの微細構造モデルに基づいて、ヨウ素の溶出過程で生じるガラスの水和･溶解と 2 次鉱物の析出、ならびにそれらに伴う物質移行について、理論的に解明するための方策及び計画を明らかにした。併せて、ガラスの微細構造モデルから理論計算を実施する際に必要となる原子間ポテンシャルの生成が、別途検討されている酸化物ガラスの原紙間ポテンシャル生成のアルゴリズムを用いて実施可能であることを確認した。これらによって、今後 4 年間で BPI ガラスからのヨウ素の放出挙動を理論的に解明していくことで、上述の反応の継続性に加え、ヨウ素の溶出量の変化が（時間）$^{0.5}$ に従うことの根拠を得られるものと考えている。

さらに、ヨウ素および鉛からなる 2 次鉱物の分析からは、この鉱物が$(O_2Pb_3)_2(BO_3)I$ である可能性が示された。他の鉱物が析出した可能性の検討に加え、この鉱物の溶解度や溶解速度等について検討していくことで、長期的なヨウ素の溶出挙動への影響を明らかにしていくことが必要である。

これらの成果によって、BPI ガラスからのヨウ素の長期的な放出挙動について、現象論および理論の両面から、その継続性についての根拠を得られる見通しを得ることができ、HIP 固化体のこれまでの成果と合わせて、幅広い地下環境において適用可能であり且つ、地質媒体の水理特性が好ましくない環境でも、ヨウ素 129 の影響を抑制できる固化体のオプションを提示するための道筋を明らかにすることができた。

6.5. おわりに

本事業では、HLW と TRU 廃棄物の地層処分システムを対象に、過渡期から処分施設閉鎖後長期におけるニアフィールドを構成する材料間の相互作用などを考慮したニアフィールドの状態変遷をより現実的に評価する技術の構築を目的として、処分場においてガラス固化体がおかれる状態をより忠実に反映した条件における複数の異なる構成材料からなるニアフィールドの状態変遷の評価、TRU 廃棄物の地層処分の信頼性を担保する人工バリアの閉じ込め機能の高度化、廃棄体による水の放射線分解等に由来して発生するガスの影響評価を実施するとともに、ガス発生量低減に向けた固化処理技術の開発を実施している。

令和 5 年度は、各現象の理解の深化、現象解析モデルの開発、長期挙動や相互作用のモデル化や評価手法・手順の構築などを通じて、処分システムの過渡期から長期にわたる状態変遷評価手法の高度化を進めるとともに、TRU 廃棄物処分におけるガス発生や核種の放出に係る廃棄体、容器の特性の向上に資する知見を取得した。また、HLW の処分システムを対象に、得られた知見をニアフィールドの核種移行評価に反映する観点から実施内容や反映事項等の整理を行った。

今後は個別現象に関する知見拡充とニアフィールドの環境変遷を評価する技術の構築を継続するとともに、得られた成果を TRU 廃棄物処分システムを含めてニアフィールドの核種移行評価に反映するための取り組みを行う。

参考文献

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 ＴＲＵ廃棄物処理・処分に関する技術開発, 2023.

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, 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,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, 2023.

Appendix Ⅰ

セメント－ベントナイト相互作用を対象とした

化学反応－物質輸送解析の詳細設定

目　次

1. 鉱物設定 1
2. 二次鉱物の設定 8
3. 液相組成設定 8
4. 解析設定 9

表　目　次

表 1　Case 1 における緩衝材(ケイ砂 30wt%)の初期鉱物組成 1
表 2　Case 2、3、4 における緩衝材（クニゲル V1 100%）の初期鉱物組成 3
表 3　モンモリロナイトのイオン交換選択係数 4
表 4　各ケースのコンクリート、セメントの配合 5
表 5　OPC クリンカーの化学組成 5
表 6　未水和 OPC の鉱物組成 5
表 7　未水和 HFSC の鉱物組成 6
表 8　OPC の初期水和物とコンクリートの組成 7
表 9　HFSC の初期水和物組成 8
表 10　二次鉱物の設定 8
表 11　初期液相として入力した値 9
表 12　一般的鉱物の反応速度式中の定数 11
表 13　モンモリロナイトの反応速度式中の定数 11
表 14　炭酸を含む鉱物の反応速度式中の定数 12
表 15　石英の反応速度式中の定数 12
表 16　C-S-H ゲルの反応速度定数 13
表 17　反応速度が温度、pH に依存しないと仮定した鉱物の反応速度定数 14
表 18　鉱物の初期比表面積 15

本文 2.2.3「セメントーベントナイトの相互作用」の(2) 2)「化学反応－物質輸送連成モデルによる解析」における詳細設定を以下に示す。

1. 鉱物設定

1.1 緩衝材

緩衝材としては、Case 1-1, 1-2 (以下 Case 1 とする)の長期挙動予察解析ではクニゲル V1 とケイ砂を重量比 7:3 で混合したものを、Case 2-1、2-2 (以下 Case 2)、3-1、3-2、3-3、3-4(以下 Case 3)、4-1、4-2（以下 Case4）の接触試験体系解析ではケイ砂は混合せずにクニゲル V1 のみを使用することを想定した。Case 1 ではその初期鉱物組成は、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（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005 : 以下「第 2 次 TRU レポート」とする）における設定を基本とし、表 1 のように設定した。

表 1　Case 1 における緩衝材(ケイ砂 30wt%)の初期鉱物組成

	A. クニゲル V1 の鉱物組成[wt%]	B. ケイ砂を 30wt%混合した鉱物組成[wt%]	C. 圧縮後の体積当たり重量 (=B/100×1.60) [g cm^{-3}]	D. mol 質量 i) [g mol^{-1}]	E. mol 体積 i) [cm^3 mol^{-1}]
Montmoril-lonite	48	33.60	0.5376	367.0170	135.843
Calcite	2.4	1.680	0.02688	100.0872	36.934
Chalcedony	38	56.60	0.9056	60.0843	22.688
Quartz	0.6	0.4200	0.006720	60.0843	22.688
Albite	2.35	1.645	0.02632	262.2230	100.250
Anorthite	2.35	1.645	0.02632	278.2072	100.790
Dolomite	2.4	1.680	0.02688	184.4014	64.365
Analcime	3.3	2.310	0.03696	220.1539	97.100
Pyrite v)	0.6	0.4200	0.006720	119.9790	23.940
Porosity	-	-	-	-	-
Total	100	100	1.60	-	-

表 1　Case 1 における緩衝材(ケイ砂 30wt%)の初期鉱物（続き）

	F. 各鉱物 Vol% (=C/D×E×100) [Vol%]	G. 単位体積当たり鉱物量(=D/E×10⁶) [mol m⁻³]	H. 間隙水と平衡後(25℃)の単位体積当たり鉱物量 iii) [mol m⁻³]	I. 平衡後の Vol% (=F×H/G)iv) [Vol%]
Montmorillonite	19.90	1465	1465	19.90
Calcite	0.9919	268.6	263.2	0.9721
Chalcedony	34.20	15070	15070	34.20
Quartz	0.2537	111.8	111.8	0.2537
Albite	1.006	100.4	100.4	1.006
Anorthite	0.9535	94.61	94.61	0.9535
Dolomite	0.9382	145.8	145.8	0.9382
Analcime	1.630	167.9	167.9	1.630
Pyrite v)	0.1341	56.01	56.01	0.1341
Porosity	60.00 ii)	-	-	59.98 ii)
Total	100.00	-	-	100.00

i) PHREEQC20.dat（v1.2）の値。

ii) Porosity については［100 − 鉱物合計］で計算した。

iii) 間隙体積相当量の純水と G の鉱物量との平衡計算を PHREEQC によって行った結果。Calcite、Chalcedony 以外の鉱物は反応しないものとして計算した。小田・柴田（1999）に基づき、モンモリロナイトによるイオン交換と表面酸・塩基解離反応を考慮した。反応時の温度は第 2 次 TRU レポートに合わせて 25℃とした。ここに示した値を CABARET による化学反応-物質輸送連成解析に使用した。有効数字が 4 桁未満の数値もあるが、計算途中であるためそれらの数値についても 4 桁までの値を使用した。

iv) 厳密にいえば不純物と Calcite の溶出による間隙増加後の再平衡計算が必要になるが、間隙の増加はわずかであるため、ここでは実施していない。

v) Pyrite は CABARET では不活性として扱った。

Case 2、3、4 では第 2 次 TRU レポートにおける設定しつつ、モンモリロナイト含有量の実測値及び不純物も考慮して表 2 のように設定した。

表 2　Case 2、3、4 における緩衝材（クニゲル V1 100%）の初期鉱物組成

	A. 第 2 次 TRU レポートの重量比 [wt%]	B. モンモリロナイト量更新値 [i]及び不純物量 [ii]を踏まえた重量比 [iii][wt%]	C. 圧縮後の体積当たり重量 (=B/100×1.37) [g cm^{-3}]	D. mol 質量 [iv] [g mol^{-1}]	E. mol 体積 [iv] [cm^3 mol^{-1}]
Montmoril-lonite	48	60[i]	8.220×10^{-1}	367.0170	135.843
Calcite	2.4	1.828	2.505×10^{-2}	100.0872	36.934
Chalcedony	38	28.95	3.966×10^{-1}	60.0843	22.688
Quartz	0.6	0.4571	6.262×10^{-3}	60.0843	22.688
Albite	2.35	1.790	2.453×10^{-2}	262.2230	100.250
Anorthite	2.35	1.790	2.453×10^{-2}	278.2072	100.790
Dolomite	2.4	1.828	2.505×10^{-2}	184.4014	64.365
Analcime	3.3	2.514	3.444×10^{-2}	220.1539	97.100
Pyrite[viii]	0.6	0.4571	6.262×10^{-3}	119.9790	23.940
NaCl	-	0.0011[ii]	1.507×10^{-5}	58.4428	27.015
KCl	-	0.0044[ii]	6.028×10^{-5}	74.5510	37.524
$CaSO_4$	-	0.38[ii]	5.206×10^{-3}	136.1356	45.933
Porosity	-	-	-	-	-
Total	100	100	1.37	-	-

表 2　Case 2、3、4 における緩衝材（クニゲル V1 100%）の初期鉱物組成（続き）

	F. 各鉱物 Vol% (=C/D×E×100) [Vol%]	G. 単位体積当たり鉱物量(=D/E×10^6) [mol m^{-3}]	H. 間隙水と平衡後(20℃)の単位体積当たり鉱物量 [vi] [mol m^{-3}]	I. 平衡後の Vol% (=F×G/I)[vii] [Vol%]
Montmorillonite	30.42	2240	2240	30.42
Calcite	0.9243	250.3	246.5	0.9104
Chalcedony	14.98	6601	6601	14.98
Quartz	0.2365	104.2	104.2	0.2365
Albite	0.9377	93.53	93.53	0.9377
Anorthite	0.8886	88.16	88.16	0.8886
Dolomite	0.8743	135.8	135.8	0.8743
Analcime	1.519	156.4	156.4	1.519
Pyrite[viii]	0.1250	52.19	52.19	0.1250
NaCl	6.966×10^{-4}	0.2579	0	0
KCl	3.034×10^{-3}	0.8086	0	0
$CaSO_4$	0.1757	38.24	0	0
Porosity	48.91[v]	-	-	49.11[v]
Total	100.00	-	-	100.00

i) 接触試験で用いた Kunigel V1 のメチレンブルー吸着量実測値 84 mmol/100g をモンモリロナイトのメチレンブルー吸着量 140 mmol/100g（Komine et al., 2020）で除して計算。

ii) Ochs et al.（1999）の値。

iii) モンモリロナイト、不純物以外の鉱物は Total が 100%になるよう均等に減少させた。

iv) PHREEQC20.dat（v1.2）の値。

v) Porosity については［100 − 鉱物合計］で計算した。

vi) 間隙体積相当量の純水と G の鉱物量との平衡計算を PHREEQC によって行った結果。Calcite、Chalcedony、NaCl、KCl、$CaSO_4$ 以外の鉱物は反応しないものとして計算した。小田・柴田（1999）に基づき、モンモリロナイトによるイオン交換と表面酸・塩基解離反応を考慮した。反応時の温度は接触試験に合わせて 25℃とした。ここに示した値を CABARET による化学反応-物質輸送連成解析に使用した。有効数字が 4 桁未満の数値もあるが、計算途中であるためそれらの数値についても 4 桁までの値を使用した。

vii) 厳密にいえば不純物と Calcite の溶出による間隙増加後の再平衡計算が必要になるが、間隙の増加はわずかであるため、ここでは実施していない。

viii) Pyrite は CABARET では不活性として扱った。

PHREEQC による計算の際に使用したモンモリロナイトのイオン交換選択係数は表 3 のように第 2 次 TRU レポートに採用された小田・柴田（1999）の値とした。モンモリロナイト表面の酸・塩基解離反応については、反応比表面積 29 $m^2\ g^{-1}$、表面サイト密度 6.478×10^{-5} mol g^{-1}、解離定数 $K(-) = 10^{-7.92}$、解離定数 $K(+) = 10^{5.67}$ を与えた（小田・柴田, 1999）。

表 3　モンモリロナイトのイオン交換選択係数

	イオン交換反応選択係数 log K
2ZNa-Z_2Ca	0.69
ZNa-ZK	0.42
2ZNa-Z_2Mg	0.67

1.2 コンクリート・セメント

各ケースのコンクリート、セメントの配合は表 4 のとおりとした。Case 1 については第 2 次 TRU レポートの配合(表 3B-2)を参考とした。

表 4　各ケースのコンクリート、セメントの配合

	クリンカー[kg]	水[kg]	骨材[kg]
Case 1-1；OPC+骨材	1	0.55	6.257
Case 1-2；HFSC+骨材	1	0.5	6.257
Case 2、3、4；HFSC のみ	1	0.5	-

それらの初期鉱物組成および初期間隙水化学組成は、以下のように決定した。未水和 OPC の鉱物組成を、OPC クリンカーの化学組成から、ノルム計算（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）によって算出した。計算に用いた化学組成は、第 2 次 TRU レポートで使われていた値（表 6.2.2.5-2）を 100%に案分した値とした（表 5）。

表 5　OPC クリンカーの化学組成

	wt.%
SiO_2	21.59
Al_2O_3	5.38
Fe_2O_3	2.60
CaO	65.67
MgO	1.98
SO_3	1.97
Na_2O	0.24
K_2O	0.57
Total	100.00

表 5 の値から算出された未水和 OPC の鉱物組成を表 6 に示す。

表 6　未水和 OPC の鉱物組成

	mol kg^{-1}
Anhydrite	0.1714
C2S_beta	0.9743
C3A	0.3599
C3S	2.571
C4AF	0.1609
K_2O(s)	0.005945
K_2SO_4(s)	0.05351
Na_2O(s)	0.02130
Na_2SO_4(s)	0.01743
Periclase	0.4838

*ここに示した 4 桁の値を PHREEQC による水和計算に使用した。実際の有効数字は 4 桁未満である。

未水和 HFSC の鉱物組成については原子力環境整備促進・資金管理センター、日本原子力研究開発機構（2019）で使用された値をそのまま用いた（表 7）。

表 7　未水和 HFSC の鉱物組成

	mol kg^{-1}
Anhydrite	0.08263
C2S_beta	0.5198
C3A	0.1388
C3S	0.9162
C4AF	0.06914
Calcite	0.03318
Corundum	0.01354
FA_glass	0.02548
FA_glass (unreacted)	0.255
Graphite	0.9949
Hematite	0.02205
K2O(s)	0.02807
K2SO4(s)	0.01758
Lime	0.01569
Mullite	0.1700
Na2O(s)	0.01697
Na2SO4(s)	0.007551
Periclase	0.2317
Quartz	0.4962
SiO2(am)	2.576
SiO2(am) (unreacted)	0.5128
SO3_beta	0.0002498
Total mass (kg)	0.9831

上記のクリンカー鉱物組成を用いて、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）で説明されている平成 30 年度版セメント水和反応モデルに従って、PHREEQC による水和計算をおこなった。熱力学データベースには PHREEQC20.dat（v1.2）を使用した。水和中の温度は、OPC の場合(Case 1-1)は第 2 次 TRU レポートに合わせて 25℃、HFSC の場合は 20℃とした。Na 及び K の C-(A-)S-H ゲル/水分配係数については、HFSC では、K_d, K = 11、K_d, Na = 3.9、OPC では K_d, K = 0.55、K_d, Na = 0.38 とした（原子力環境整備促進・資金管理センター、日本原子力研究開発機構 2022）。求められた OPC の初期水和物組成を表 8 に、HFSC の初期水和物組成を表 9 に示す。今後、C(095)A(01)SH は Ca/(Al+Si)=0.95、Al/Si=0.1 の C-A-S-H ゲル、C(09)A(01)SH は Ca/(Al+Si)=0.9、Al/Si=0.1 の C-A-S-H ゲルを示す。C-S-H ゲルについては表 16 で後述するように Ca/Si=1.65 の場合は CSH165 等と記載する。

表 8　OPC の初期水和物とコンクリートの組成

	A.水和後モル数[mol]	B.モル体積 i) [$cm^3\ mol^{-1}$]	C.体積 (A×B) [cm^3]	D.体積当たりモル数 iv) (A/ΣC×10^6) [$mol\ m^{-3}$]	E 体積分率 (C / ΣC×100) [%]
間隙			251.8 ii)		8.114
骨材			2317 iii)		74.66
鉱物					
Portlandite	4.011	33.060	132.6	1292	4.272
CSH165	3.187	77.406	246.7	1027	7.948
Katoite_AlSi08	0.2789	142.236	39.67	89.86	1.2781
Katoite_FeSi084	0.1609	148.800	23.94	51.84	0.7714
Brucite	0.4838	24.630	11.916	155.9	0.3839
Monosulfate_Al	0.2418	330.584	79.94	77.90	2.575
計					100.00

i)　PHREEQC20.dat（v1.2）の値。
ii)　間隙体積は残存した水の体積とした。
iii)　骨材の真密度を 2.70g cm^{-3} として(第 2 次 TRU レポート)計算した値。
iv)　CABARET による化学反応-物質輸送連成解析に使用した 4 桁の値。実際の有効数字は 4 桁未満。

表 9　HFSC の初期水和物組成

	A.水和後モル数[mol]	B.モル体積 i) [cm^3 mol^{-1}]	C.体積 (A×B)[cm^3]	D.体積当たりモル数 iii) (A/ΣC×10^6) [mol m^{-3}]	E.体積分率 (C/ΣC×100) [%]
間隙			305.1 ii)		36.79
骨材			(2317) iii)		
鉱物名					
C(095)A(01)SH	2.510	73.3	184.0	3026	22.18
C(090)A(01)SH	1.666	71.6	119.3	2009	14.38
CSH095	0.1400	59.657	8.352	168.8	1.007
Brucite	0.2459	24.630	6.057	296.5	0.7302
Ettringite_Al	0.03449	706.200	24.36	41.58	2.937
Calcite	0.03318	36.934	1.225	40.00	0.1477
Graphite iv)	0.9949	5.298	5.271	1199	0.6355
SiO2(am) iv)	0.5128	29.000	14.87	618.2	1.793
Quartz iv)	0.4962	22.688	11.26	598.2	1.357
FA_glass_H24 iv)	0.2546	478.500	121.8	306.9	14.68
Mullite iv)	0.1697	134.550	22.83	204.6	2.753
Fe(OH)3(mic) iv)	0.1476	26.987	3.983	178.0	0.4802
Hematite iv)	0.02205	30.274	0.6675	26.58	0.08048
Corundum iv)	0.01354	25.575	0.3463	16.32	0.04175

i) PHREEQC20.dat（v1.2）の値。C(095)A(01)SH、C(09)A(01)SH については構造が類似している C-S-H ゲルの mol 体積から Helgeson et al. (1978)の手法で推定。
ii) 間隙体積は残存した水の体積とした。
iii) Case 1-2 でのみ考慮。
iv) CABARET による化学反応-物質輸送連成解析に使用した 4 桁の値。実際の有効数字は 4 桁未満。Case 1-2 においては骨材体積 2317 [cm^3]を考慮した値を入力。
v) CABARET による化学反応-物質輸送連成解析では不活性として扱った。

2. 二次鉱物の設定

二次鉱物は、小田らの報告（2005）に基づいて表 10 のように設定した。

表 10　二次鉱物の設定

共通	Case 1 (長期予察解析)	Case 2、3、4 (接触試験解析)
CSH（165−085）, Katoite-Al, Stratlingite-Al, Ettringite-Al, Hemicarbonate-Al, Friedel_Salt-Al, Gypsum, Analcime, Hydrotalcite_M6Ac, Phillipsite(alk, dia)	Clinoptilolite(alk, dia), Heulandite(dia), Sepiolite	Phillipsite(Ca, K, Na)

3. 液相組成設定

緩衝材とセメントの初期間隙水の化学組成は、前述の鉱物設定において PHREEQC による固

相組成の計算をした際に、同時に出力される液相組成を用いた。それらの組成及び接触液の化学組成を表 11 に示す。

表 11　初期液相として入力した値

	緩衝材 間隙水 i)		OPC 間隙水	HFSC 間隙水	HFSC 平衡水 iii)	FRHP iv)
	Case 1	Case 2, 3, 4				
計算時温度	25℃	20℃	25℃	20℃	20℃	25℃
pH	8.484	7.312	13.585	11.881	11.38	8.46
元素濃度[mol kg^{-1}]						
Al	1×10^{-20} ii)	3×10^{-8} ii)	1.469×10^{-4}	2.204×10^{-6}	1.0×10^{-5}	3.430×10^{-7}
C	1.347×10^{-2}	7.867×10^{-3}	3.866×10^{-5}	1.641×10^{-5}	8.1×10^{-4}	3.541×10^{-3}
Ca	4.576×10^{-5}	4.294×10^{-3}	1.039×10^{-3}	2.627×10^{-3}	4.47×10^{-3}	1.090×10^{-4}
Cl	1×10^{-20} ii)	2.184×10^{-3}	2.631×10^{-15}	1×10^{-20} ii)	0.13×10^{-3}	1.052×10^{-4}
Fe	1×10^{-20} ii)	1×10^{-20} ii)	5.806×10^{-8}	8.287×10^{-8}	8.287×10^{-8}	9.731×10^{-10}
K	1.192×10^{-4}	5.056×10^{-4}	2.046×10^{-1}	1.219×10^{-2}	5.28×10^{-3}	6.151×10^{-5}
Mg	3.539×10^{-6}	1.437×10^{-4}	1.512×10^{-8}	2.436×10^{-6}	2.436×10^{-4}	5.001×10^{-5}
Na	2.674×10^{-2}	1.652×10^{-1}	1.901×10^{-1}	1.909×10^{-2}	1.09×10^{-2}	3.551×10^{-3}
S	1×10^{-20} ii)	7.831×10^{-2}	1.196×10^{-3}	1.487×10^{-2}	1.015×10^{-2}	1.110×10^{-4}
Si	3.277×10^{-4}	2.504×10^{-4}	1.250×10^{-4}	2.400×10^{-4}	9.06×10^{-4}	3.390×10^{-4}

i) 接触試験のケースにおいて、クニゲル側保水槽及び定濃度境界は純水とした。

ii) 実際は 0 であるが計算を補助するために与えた値。

iii) HFSC 側保水槽及び定濃度境界の値。接触試験で使用された HFSC 平衡液（HFSC 硬化体を粉砕し、超純水に浸漬して作製）の実測値。ただし、Fe、Mg については検出限界以下であったため、H30 モデルの HFSC 間隙水と同じ値とした。

iv) 第 2 次 TRU レポートの値(根拠資料集 4-5 表 5)から B, P, N, F を除外したうえで pH を 8.46 に固定し、Cl でチャージバランスを調整した値。

4. 解析設定

4.1 モンモリロナイトのイオン交換と酸・塩基解離反応

イオン交換と表面酸・塩基解離反応に関するパラメータは 1. 鉱物設定で緩衝材と間隙水の平衡計算をした時と同様とした。

4.2 物質輸送特性

実効拡散係数 De [m^2 s^{-1}]は、式（1）で計算した。

$$De = Dw \times \varepsilon^a \qquad (1)$$

ここで、Dw は自由水中の拡散係数[m^2 s^{-1}]、ε は間隙率[無次元]、a は媒体の種類に応じた係数で

ある。Case 1 では Dw は 2.27×10^{-9} m^2 s^{-1} とした。Case 2、3、4 での Dw の値は、先行事業(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2023)と同様に、Mills and Lobo （1989）に記載された塩化物イオンの拡散係数のアレニウスプロットから、20℃では 1.8×10^{-9} m^2 s^{-1}、50℃では 3.3×10^{-9} m^2 s^{-1}、80℃では 5.6×10^{-9} m^2 s^{-1} とした。a については、緩衝材の場合はベントナイト中のモンモリロナイト含有割合 fs を用いた以下の式（2）で計算した（Mihara and Sasaki, 2005）。

$$a = 2.22 \times fs^{0.13} + 1 \qquad (2)$$

ここで、fs はベントナイト中のモンモリロナイト含有割合である。セメントの場合は、Case 1 では OPC でも HFSC でも a = 3.05（第 2 次 TRU レポート）、その他のケースでは a = 5.84（三原・鳥居, 2009）とした。

4.3 定濃度境界

先行事業(原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 2023)での接触試験解析では保水槽の液相分析のための液交換を定濃度境界を介した拡散による希釈で表現していたが、保水槽の拡散係数が実際より小さくなるという問題があった。そこで本事業では所期の交換率になるよう境界面の一部のみを定濃度境界とする方法を採用した。1 次元体系では、長さ L [m]で分子の拡散係数が D [m^2 s^{-1}]の場合、体系内の分子の外部との交換率 τ は $2D/L^2$ [s^{-1}]と計算することができる。さらに、外部との境界のうち、割合 x[無単位]のみを定濃度境界とすると、$\tau = 2D/L^2*x$ となる。解析対象とした HFSC-50℃-3Y 試験、HFSC-80℃-4Y 試験における保水液交換率は 3.75×10^{-8} s^{-1}、3.94×10^{-8} s^{-1} であり、それらの交換率に合わせて x を設定した。

4.4 鉱物の溶解・生成反応速度データ

鉱物の溶解・生成反応速度データについては、基本的には日本原子力研究開発機構（2014）のデータセットを用いた。

4.4.1 一般鉱物の反応速度

一般的な鉱物の反応速度式は（3）式で表した（日本原子力研究開発機構, 2015）。

$$r = A \cdot \left[k_{\mathrm{n}} \cdot \exp\left\{ \frac{-e_{\mathrm{n}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_{\mathrm{b}} \cdot \exp\left\{ \frac{-e_{\mathrm{b}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot {a_{\mathrm{H+}}}^{n} \right] \cdot \left[1 - \exp\left\{ m \cdot \left(\frac{\Delta G_{\mathrm{r}}}{RT} \right)^{p} \right\} \right] \qquad (3)$$

ここで、r は反応速度[mol m^{-2} s^{-1}]、k_{n} および k_{b} は中性領域およびアルカリ性領域での単位比表面積当たりの反応速度定数[mol m^{-2} s^{-1}]、A は単位体積当たりの反応表面積[m^2 m^{-3}]、e_{n} および e_{b} は中性領域およびアルカリ性領域でのみかけの活性化エネルギー[J mol^{-1}]、R は気体定数[J mol^{-1} K^{-1}]、T および T_0 は絶対温度および 25℃における絶対温度[K]、$a_{\mathrm{H+}}$ は H$^+$イオン活量[無単位]、ΔG_{r} は反応のギブス自由エネルギー[J mol^{-1}]、n は pH 依存性についてのパラメータ[無単位]、m、p は飽和に近い状態で飽和度の影響が非線形関数となる場合（Nagy and Lasaga, 1992; Cama et al., 2000; 小田ら, 2013）のパラメータ [無単位]を表す。また、ギブス自由エネルギー ΔG_{r} は（4）式で表される。

$$\Delta G_{\mathrm{r}} = RT \cdot \ln\left(\frac{IAP}{K_{sp}}\right) \qquad (4)$$

ここで、IAP は反応の化学量論に応じた溶存化学種の活量積[無単位]、K_{sp} は溶解度定数[無単位]を表す。さらに、一部の鉱物においてパラメータ m は（5）式で表される（小田ら, 2013）。

$$m = 10\text{^}\{4.75\times\log(T)-0.27\times\mathrm{pH}-13.39\} \quad (5)$$

なお、m=p=1 の場合、（3）式は飽和指数 SI を用いて、（6）式とも表される

$$r = A\cdot\left[k_{\mathrm{n}}\cdot\exp\left\{\frac{-e_{\mathrm{n}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\}+k_{\mathrm{b}}\cdot\exp\left\{\frac{-e_{\mathrm{b}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\}\cdot {a_{\mathrm{H+}}}^{n}\right]\cdot[1-10^{SI}] \quad (6)$$

表 12 に、各鉱物の、（3）式を用いる場合の反応速度式中の定数を示す。Analcime、Zeolite、Chalcedony のパラメータの不確実性検討については本文を参照。反応表面積（式中の A）については別途記述する。また、C-S-H ゲルをはじめとした、反応速度が温度、pH に依存しないと仮定した鉱物については後述する。

表 12　一般的鉱物の反応速度式中の定数

		Log k_{n}[i)]	Log k_{b}[i)]	e_{n} [kJ mol^{-1}]	e_{b} [kJ mol^{-1}]	n	m	p	Ref
Albite		−12.4	−16.3	56.6	34.8	−0.5	（5）式	3	ii),iii),iv)
Anorthite		−12.4	−16.3	56.6	34.8	−0.5	（5）式	3	ii),iii),iv)
Analcime, Zeolite	Case1, 2-1		−11.41		77.1	0	1	1	ii),v)
	上記以外		−15.96		133	0	1	1	v)
Chalce-dony	下記以外		−14.51		108	−0.52	1	1	ii),vi),vii)
	Case3-1,3-4		−14.78		132	−0.57	1	1	vi),vii)
	Case3-2, 3-3,4-2		−14.24		84	−0.47		1	vi),vii)
Brucite		−8.24		42.0			1	1	viii)
Hydrotalcite_M6Ac		−8.24		42.0			1	1	viii)
Sepiolite			−12.40		29	0	1	1	ix)

i)k の単位は[mol m^{-2} s^{-1}]; ii)日本原子力研究開発機構, 2014; iii)Knauss and Wolery, 1986; iv)小田ら, 2013; v)Wilkin and Barnes, 2000; vi) Plettinck et al.,1994; vii)e_{b} の値は Quartz の値（Knauss and Wolery, 1988）を暫定的に使用; viii)Palandri and Kharaka, 2004; ix)日本原子力研究開発機構,2018 (Palandri and Kharaka, 2004 の Phlogopite のデータを使用)

4.4.2 モンモリロナイトの反応速度式

モンモリロナイトの反応速度式は各イオン型共通で（7）式を用いる。

$$r = A\cdot\left[k_{\mathrm{b}}\cdot {a_{\mathrm{H+}}}^{n}\cdot\exp\left(\frac{-e_{\mathrm{b}}}{RT}\right)\right]\cdot\left[1-\exp\left\{m\cdot\left(\frac{\Delta G_{\mathrm{r}}}{RT}\right)^{p}\right\}\right] \quad (7)$$

表 13 にモンモリロナイトの反応速度式中の定数を示す。

表 13　モンモリロナイトの反応速度式中の定数

	Log ($k_{\mathrm{b}}\times {a_{\mathrm{H+}}}^{n}$)	e_{b} [kJ mol^{-1}]	m	p	Ref.
Montmorillonite	0.212×pH−6.40	38.7	（5）式	3	i)

i)小田ら, 2013。k の単位は[mol m^{-2} s^{-1}]

4.4.3 炭酸を含む鉱物の反応速度式

炭酸を含む鉱物は CO_2 分圧 P_{CO_2} を用いて（8）式で表される（Palandri and Kharaka, 2004; 酸性項は省略）。

$$r = A \cdot \left[k_{\mathrm{n}} \cdot \exp\left\{ \frac{-e_{\mathrm{n}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\} + k_{\mathrm{b}} \cdot \exp\left\{ \frac{-e_{\mathrm{b}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot {P_{CO_2}}^{n} \right] \cdot \left[1 - \exp\left\{ m \cdot \left(\frac{\Delta G_{\mathrm{r}}}{RT}\right)^{p} \right\} \right] \qquad (8)$$

表 14 に各鉱物に対応するこれらの定数・パラメータの値を示す。

表 14　炭酸を含む鉱物の反応速度式中の定数

	Log k_{n}	Log k_{b}	e_{n} [kJ mol^{-1}]	e_{b} [kJ mol^{-1}]	n	m	p	Ref.
Calcite	−5.81	−3.48	23.5	35.4	1	1	1	i),ii)
Dolomite	−7.53	−5.11	52.2	34.8	0.5	1	1	i),ii)

i)日本原子力研究開発機構, 2014; ii) Palandri and Kharaka, 2004。
k の単位は[mol m^{-2} s^{-1}]

4.4.4 石英の反応速度式

石英の反応速度は $Al(OH)_4^-$ の反応抑制を考慮して（9）式で表される（日本原子力研究開発機構, 2014; Bickmore et al., 2006; 酸性項は省略）。

$$r = A \cdot (1-S) \cdot k_{\mathrm{b}} \cdot \exp\left\{ \frac{-e_{\mathrm{b}}}{R}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)\right\} \cdot {a_{\mathrm{H+}}}^{n} \cdot \left[1 - \exp\left\{ m \cdot \left(\frac{\Delta G_{\mathrm{r}}}{RT}\right)^{p} \right\} \right] \qquad (9)$$

ここで、S は $Al(OH)_4^-$ の物質量[$Al(OH)_4^-$][mol kg^{-1}]を用いて（10）式で表される。

$$S = \frac{(-3000 \cdot p\mathrm{H} + 39700) \cdot [Al(OH)_4{}^-]}{1 + (-3000 \cdot pH + 39700) \cdot [Al(OH)_4{}^-]} \cdot (-0.196 \cdot pH + 2.94) \qquad (10)$$

ここで、(−3000·pH+39700)は $Al(OH)_4^-$ 濃度当たりの石英表面の被覆割合[kg mol^{-1}]、(−0.196·pH+2.94)は被覆割合の最大値[無単位]である。$Al(OH)_4^-$ 濃度が増加するほど S は最大値に近づき、減少するほど 0 に近づくことを表現している。

石英に関するパラメータは表 15 のようにまとめられる。

表 15　石英の反応速度式中の定数

	Log k_{b}	e_{b} [kJ mol^{-1}]	n	m	p	Ref.
Quartz	−14.14	8.66×pH+16.17（上限 100）	−0.3	1	1	i)

i)日本原子力研究開発機構, 2014。k の単位は[mol m^{-2} s^{-1}]

4.4.5 反応速度が温度、pH に依存しないと仮定した鉱物の反応速度式

これらの鉱物の場合、（6）式をさらに簡略化した形式になり、反応速度は以下のように表される。

$$r = A \cdot k \cdot (1 - 10^{SI}) \qquad (11)$$

原子力機構の熱力学データベースでは C-S-H ゲルは Ca/Si 比 0.55−1.65（0.1 刻み）の離散化モデルで表現されている（Walker et al. 2016）。異なる Ca/Si 比における Log k は、Trapote-Barreira et al.（2014）が経験的に示した多項回帰式から計算した（表 16）。表 17 には、反応速度が温度、pH に依存しないものと仮定したその他の鉱物の反応速度定数を示す。Katoite-FeSi084 については暫定的に Katoite-Al と同じ式・値とした。また、C-A-S-H ゲルについては暫定的に CSH100 と同じ式・値とした。

表 16　C-S-H ゲルの反応速度定数

本解析における鉱物名	Ca/Si 比	Log k
CSH165	1.65	−8.44
CSH155	1.55	−8.50
CSH145	1.45	−8.65
CSH135	1.35	−9.19
CSH125	1.25	−9.97
CSH115	1.15	−10.66
CSH105	1.05	−10.96
CSH100	1.00	−10.94
CSH095	0.95	−10.86
CSH090	0.90	−10.79
CSH085	0.95	−10.87

溶解速度定数大のケースではこれらに+1.1、小のケースでは−1.1 を足して使用。

表 17　反応速度が温度、pH に依存しないと仮定した鉱物の反応速度定数

	Log k i)	根拠 i)
Portlandite	−6	C-S-H ゲルより溶解が早いため
C(095)A(01)SH	−10.94	CSH100 と同じ
C(090)A(01)SH	−10.94	CSH100 と同じ
Ettringite-Al	−10.94	CSH100 と同じ
Monosulfate-Al	−10.94	Ettringite と同じ
Monocarbonate-Al	−10.94	Ettringite と同じ
Hemicarbonate-Al	−10.94	Ettringite と同じ
Katoite-Al	−10.94	CSH100 と同じ
Katoite-AlSi080	−10.94	CSH100 と同じ
Katoite-FeSi084	−10.94	CSH100 と同じ
Stratlingite	−10.94	CSH100 と同じ
Friedel_Salt	−10.94	Ettringite と同じ
Gypsum	−2.79	Palandri and Kharaka（2004）より

i)k の単位は mol m^{-2} s^{-1}。根拠は日本原子力研究開発機構（2018）と同様。

4.4.6 鉱物の比表面積

鉱物の比表面積は、間隙率の減少に伴って鉱物と間隙水の接する面積を減らす効果を入れるため、以下の式（12）に従って入力するものとする。

$$A = A_0 \left(\frac{n}{n_0}\right)^{2/3} \qquad (12)$$

ここでA_0は初期の比表面積（表 18）、n は現在の間隙率、n_0 は初期の間隙率である。C-S-H ゲルについては、式（12）を適用せずに比表面積の設定値をそのまま用いて A=A_0 とする。モンモリロナイトについては、溶解に伴う結晶端面比表面積の時間変化を表した経験式（13）を与えた（Oda et al., 2014）。

$$A = A_0 \left(\frac{M}{M_0}\right)^{-0.59} \qquad (13)$$

ここで、M は現在のモンモリロナイト濃度、M_0 は初期のモンモリロナイト濃度である。

表 18　鉱物の初期比表面積

鉱物名	比表面積 i) [$m^2\ g^{-1}$]	鉱物名	比表面積 [$m^2\ g^{-1}$]
Albite	10	C(0.95)A(0.10)SH	300ii)
Analcime (他のゼオライト類も)	10	C(0.90)A(0.10)SH	300ii)
Anorthite	10	Dolomite	10
Brucite	10	Ettringite_Al	9.8
Calcite	10	Friedel_Salt_Al	9.8
Chalcedony	0.23	Gypsum	10
CSH085	327	Hemicarbonate_Al	9.8
CSH090	318	Hydrotalcite_M6Ac	11.94
CSH095	309	Katoite（全型）	10
CSH100	300	Monocarbonate_Al	9.8
CSH105	290	Monosulfate_Al	9.8
CSH115	272	Montmorillonite（全型）	2.45
CSH125	254	Portlandite	10.44
CSH135	235	Quartz	0.1
CSH145	217	Sepiolite	10
CSH155	199	Stratlingite_Al	10
CSH165	180		

i)日本原子力研究開発機構（2018）の値を使用した。; ii)暫定的に CSH100 と同じ値とした。

参考文献

Bickmore, B. R., Nagy, K. L., Gray, A. K., and Brinkerhoff, A. R., The effect of $Al(OH)_4^-$ on the dissolution rate of quartz. Geochimica et Cosmochimica Acta, 70, 290-305, 2006.

Cama, J., Ganor, J., Ayora, C., and Lasaga, C. A., Smectite dissolution kinetics at 80 °C and pH 8.8. Geochimica et Cosmochimica Acta, 64, 2701-2717, 2000.

電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構, TRU 廃棄物処分技術検討書 －第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ－ JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005.

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

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

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 2 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2021.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 3 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2022.

原子力環境整備促進・資金管理センター, 日本原子力研究開発機構, 令和 4 年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, 2023.

Ghorab, H. Y., and Kishar, E. A., Studies on the stability of the calcium sulfoaluminate hydrates. Part 1: Effect of temperature on the stability of ettringite in pure water. Cement and Concrete Research, 15, 93-99, 1985.

Helgeson, H.C., Delany, J.M., Nesbitt, H.W., and Bird, D.K., Summary and critique of the thermodynamic properties of rock-forming minerals. American Journal of Science, 278a, 1-229, 1978.

Holz, M., Heil, S. R., and Sacco, A., Temperature-dependent self-diffusion coefficients of water and six selected molecular liquids for calibration in accurate ^{1}H NMR PFG measurements. Physical Chemistry Chemical Physics, 2, 4740-4742, 2000.

Knauss, K. G., and Wolery, T. J., Dependence of albite dissolution kinetics on pH and time at 25 °C and 70 °C. Geochimica et Cosmochimica Acta, 50, 2481-2497, 1986.

Knauss, K. G., and Wolery, T. J., The dissolution kinetics of quartz as a function of pH and time at 70 C. Geochimica et Cosmochimica Acta, 52, 43-53, 1988.

Komine, H., Scale-model test for disposal pit of high-level radioactive waste and theoretical evaluation of self-sealing of bentonite-based buffers, Canadian Geotechnical Journal, vol.57, pp.608-615, 2020.

Mihara, M., and Sasaki, R., Radio-nuclides Migration Datasets (RAMDA) on cement, bentonite and rock for the performance assessment of TRU waste repository in Japan, JNC TN8400 2005-027, 2005.

三原守弘, 鳥居和之, 低アルカリ性セメント硬化体の間隙構造と塩化物イオンの見掛けの拡散係数に関する研究. JAEA-research 2008-109, 2009.

Mills, R., and Lobo, V. M. M., Self-diffusion in electrolyte solutions, vol.36 of physical sciences data, 364p, 1989.

Nagy, K. L., and Lasaga, A. C., Dissolution and precipitation kinetics of gibbsite at 80 °C and pH 3: The dependence on solution saturation state. Geochimica et Cosmochimica Acta, 56, 3093-3111, 1992.

日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分技術調査等事業セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 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セメント材料影響評価技術高度化開発報告書, 2015

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

Ochs, M., Lothenbach, B., Shibata, M., and Yui, M., Bentonite porewater chemistry, JNC TN8400 99-075, 142p, 1999.

小田治恵, 柴田雅博, ベントナイト-水相互作用の実験とモデル化, JNC TN8400 99-032, 1999.

Oda, C., Walker, C., Chino, D., Ichige, S., Honda, A., Sato, T., and Yoneda, T., Na-montmorillonite dissolution rate determined by varying the Gibbs free energy of reaction in a dispersed system and its application to a coagulated system in 0.3 M NaOH solution at 70 °C. Applied Clay Science, 93, 62-71, 2014.

小田治恵, 佐々木良一, Savage, D., Arthur, R.C., 本田明, 緩衝材の鉱物学的長期変遷シナリオ、JNC TN8400 2005-020, 2005.

小田治恵, 本田明, 高瀬博康, 小曽根健嗣, 佐々木良一, 山口耕平, 佐藤努, セメント系材料由来のアルカリ性条件における緩衝材の鉱物学的変遷シナリオに基づく化学反応・物質移動連成解析. 粘土科学, 51, 34-49, 2013.

Palandri, J. L., and Kharaka, Y. K., A compilation of rate parameters of water-mineral interaction kinetics for application to geochemical modeling. US Geological Survey Open-File Report 2004-1068, 2004.

Plettinck, S., Chou, L., and Wollast, R., Kinetics and mechanisms of dissolution of silica at room temperature and pressure. Mineralogical Magazine, 58A, 728-729, 1994.

Trapote-Barreira, A., Cama, J. and Soler, M., Dissolution kinetics of C–S–H gel: Flow-through experiments. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, vol.70, pp.17-31, 2014.

Walker, S., Sutou, S., Oda, C., Mihara, M., and Honda, A., Calcium silicate hydrate (CSH) gel solubility data and a discrete solid phase model at 25 C based on two binary non-ideal solid solutions, Cement and Concrete Research, vol.79, pp.1-30, 2016.

Wilkin, R. T., and Barnes, H. L., Nucleation and growth kinetics of analcime from precursor Na-clinoptilolite. American Mineralogist, 85, 1329-1341, 2000.