

平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書

廃棄物埋設における核種移行に係る性能評価に関する研究

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
令和 2 年 3 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果を取りまとめたものです。

本報告書に関する問合せは、原子力規制庁までお願いします。

2.3.3	既往知見の整理	2-61
2.3.4	鉱物リストに係る検討	2-68
2.3.5	地球化学計算による影響評価	2-82
2.3.6	材料／構造設計過程の妥当性判断への本研究成果の反映	2-108
2.3.7	まとめ・今後の課題	2-108
	第2章の参考文献	2-110
3.	天然バリアにおける核種移行評価手法の整備	3-1
3.1	はじめに	3-1
3.2	諸外国の既往情報の調査	3-2
3.2.1	背景・目的	3-2
3.2.2	調査結果（解析方法・モデル）	3-2
3.2.3	調査結果（海水準変動）	3-6
3.2.4	中深度処分を対象とした考え方の整理	3-11
3.3	広域における地形変化・地下水流動・核種移行解析	3-13
3.3.1	背景・目的	3-13
3.3.2	地形変化評価	3-13
3.3.2.1	現在～将来の地形変化評価の方法論	3-14
3.3.2.2	対象地域における不確かさを考慮した将来の地形変化評価	3-16
3.3.2.3	まとめ	3-29
3.3.3	地下水流動解析	3-30
3.3.3.1	解析条件	3-30
3.3.3.2	現在～将来の地下水流動解析	3-32
3.3.3.3	まとめ	3-37
3.3.4	核種移行解析	3-38
3.4	ニアフィールド領域における地下水流動解析の検討	3-58
3.4.1	処分場スケールの領域範囲の解析的検討	3-58
3.4.2	EDZ の設定による処分場からの移行への影響評価	3-63
3.4.3	まとめ	3-67
3.5	上北地域を対象とした評価に向けた調査	3-68
3.5.1	上北地域を対象としたデータ調査	3-68
3.5.2	浅海域での波蝕・海食崖の後退に関する検討	3-75
	第3章の参考文献	3-83
4.	人工バリアの性能確認及び地下水等確認に関するモニタリング評価の妥当性に係る科学的・技術的知見の取得	4-1
4.1	はじめに	4-1
4.2	室内試験による知見の取得	4-7
4.2.1	複数の埋戻し材を用いる場合の閉塞性の確認	4-7
4.2.1.1	室内試験	4-7

4.2.1.2	得られた知見について	4-11
4.2.2	ベントナイトブロックが不均質に配置された場合の閉塞性の確認	4-11
4.2.2.1	複数のブロックを不均質に積み上げた際の閉塞性の確認	4-12
4.2.2.2	斜め孔にブロックを積み上げた際の閉塞性の確認	4-13
4.2.2.3	ブロックに生じた割れ目中の気相について	4-18
4.2.2.4	得られた知見について	4-19
4.2.3	水質や水圧（流速）が変化したときのベントナイトの閉塞性	4-19
4.2.3.1	様々な水質条件・非拘束条件でのベントナイトの閉塞性	4-19
4.2.3.2	加圧・非拘束条件でのベントナイトの閉塞性	4-21
4.2.3.3	得られた知見について	4-22
4.2.4	閉鎖確認手順の更新	4-23
4.3	原位置でのボーリング孔閉鎖確認試験による経路閉鎖設計に係る知見の取得	4-24
4.3.1	原位置でのボーリング孔内経路閉鎖設計	4-24
4.3.1.1	レイアウト決定に必要な孔内情報の取得	4-25
4.3.1.2	ベントナイトの搬送方法	4-29
4.3.1.3	レイアウト設計	4-30
4.3.1.4	ベントナイトの仕様設計	4-30
4.3.1.5	閉鎖確認方法	4-31
4.3.1.6	閉鎖手順	4-32
4.3.2	ボーリング孔に適用可能な試験装置の製作	4-33
4.3.3	実際のボーリング孔を使用した閉鎖確認試験	4-33
4.3.3.1	閉塞材の定置と定置深度の確認	4-33
4.3.3.2	閉鎖確認試験（注水試験）	4-34
4.3.3.3	ボーリング孔の充填	4-35
4.3.4	得られた知見について	4-35
4.4	モニタリング孔を閉塞する際の閉鎖確認のための妥当性評価の判断指標の抽出・整理	4-36
4.5	まとめ	4-37
	第4章の引用文献	4-38
5.	廃棄物埋設に関する研究に必要な国内外の情報収集	5-1
5.1	MoDeRn2020	5-1
5.2	2019年バックエンド部会夏期セミナー	5-2
5.3	2019年日本原子力学会秋の大会	5-3
	第5章の参考文献	5-3

添付資料

Appendix-I 人工バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得

I-A 文献調査結果の概要	App.I-1
I-B 二次鉱物の分類に係るフローの前に鉱物リストに抽出されなかった鉱物.....	App.I-18
I-C C-A-S-H ゲルモデルの詳細.....	App.I-19
I-D 計算に使用した熱力学データ及び速度データ	App.I-22

Appendix-II 天然バリアにおける核種移行評価手法の整備

II-A 諸外国の既往情報の調査 (SR-PSU, SR-Site)	App. II-1
II-B 地形変化評価.....	App. II-25
II-C 地下水流動解析.....	App. II-49
II-D 人工バリアに対する条件設定.....	App. II-51
II-E 上北地域を対象としたデータ調査	App. II-61

Appendix-III 人工バリアの性能確認及び地下水等確認に関するモニタリング評価の妥当性に関する科学的・技術的知見の取得

III-A ベントナイトブロックを用いた試験に関する詳細	App. III-1
III-B ベントナイトペレットを用いた場合の閉塞性の確認	App. III-7
III-C 閉塞材挿入プローブの製作及び稼働試験	App. III-10
III-D 原位置試験で実際に孔内へ定置したブロックの透水性.....	App. III-14

Appendix-IV-A 平成 31 年度「廃棄物埋設における核種移行に係る性能評価に関する研究」検討委員会名簿.....

App.IV-1

図目次

	頁
図 1.3-1 水銀圧入法（破線）と水蒸気吸着法（実線）に基づく細孔径分布の比較	1-5
図 1.3-2 X 線小角散乱プロファイル（実線：測定結果、破線：解析結果）	1-6
図 1.3-3 TMS 分析結果	1-7
図 1.3-4 二次鉱物の分類に係るフロー	1-8
図 1.3-5 C-(A-)S-H 型鉱物群として、Tobermorite を設定(左図)、C-A-S-H を設定(右図)	1-9
図 1.3-6 SR-PSU 及び SR-Site における地下水流動解析の基本情報	1-9
図 1.3-7 不確かさを考慮した現在～将来の地形変化・地下水流動・核種移行評価の流れ	1-11
図 1.3-8 将来のグローバルな海水準変動に対するケース設定	1-11
図 1.3-9 現在～将来の地形変化の評価結果（標高・沖積層厚さ・水系網）（A-1・A-4） （汀線の変動幅：赤線（10.8 万年後）、青線（12 万年後））	1-12
図 1.3-10 代表領域における地形勾配の経時変化（ケース A-1～5）	1-12
図 1.3-11 各時刻の流速・塩分濃度分布（A-1・A-4）	1-14
図 1.3-12 代表点におけるダルシー流速の経時変化（沿岸域）	1-15
図 1.3-13 代表点におけるダルシー流速の経時変化（内陸部）	1-15
図 1.3-14 埋設深度 100m における流速・塩分濃度の平均値及び標準偏差	1-16
図 1.3-15 移行距離及び天然バリアからの核種移行フラックスの時間変化	1-17
図 1.3-16 レファレンスケースとの相対誤差（密度を考慮した全水頭）	1-18
図 1.3-17 上北地域における 2 断面での評価結果（既往のモデル）	1-19
図 1.3-18 上北地域における 2 断面での評価結果（気候項を考慮）	1-19
図 2.2-1 研究用セメント（H31C）の粒度分布	2-5
図 2.2-2 H31C の TG-DTA 曲線	2-6
図 2.2-3 H30C、H31C の水和発熱特性（左：1 時間までの拡大図、右：150 時間まで）	2-8
図 2.2-4 H31 購入のフライアッシュ（H31FA）の粒度分布	2-10
図 2.2-5 フライアッシュの TG-DTA 曲線（左：H30FA、右：H31FA）	2-11
図 2.2-6 H30 プレーンセメントペースト硬化体の材齢 413 日の XRD リートベルト解析結果	2-20
図 2.2-7 H30FA 混合セメントペースト硬化体の材齢 413 日の XRD リートベルト解析結果	2-20
図 2.2-8 H31 プレーンセメントペースト硬化体の材齢 28 日の XRD リートベルト解析結果	2-21
図 2.2-9 H31 プレーンセメントペースト硬化体の材齢 91 日の XRD リートベルト解析結果	2-21
図 2.2-10 H31FA 混合セメントペースト硬化体の材齢 28 日の XRD リートベルト解析結果	2-21
図 2.2-11 H31FA 混合セメントペースト硬化体の材齢 91 日の XRD リートベルト解析結果	2-21
図 2.2-12 選択溶解法 フロー図	2-23
図 2.2-13 相組成経時変化（左：H30 プレーンセメントペースト硬化体、右：H30 フライアッシュ 混合セメントペースト硬化体、下：凡例）	2-24
図 2.2-14 相組成経時変化（左：H31 プレーンセメントペースト硬化体、右：H31 フライアッシュ 混合セメントペースト硬化体、下：凡例）	2-24

図 2.2-15	H30 プレーンセメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の経時変化.....	2-25
図 2.2-16	H30FA 混合セメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の経時変化.....	2-25
図 2.2-17	H30FA 混合セメントペースト硬化体のフライアッシュ反応率の経時変化	2-25
図 2.2-18	H31 プレーンセメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の経時変化.....	2-26
図 2.2-19	H31FA 混合セメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の経時変化.....	2-26
図 2.2-20	H31FA 混合セメントペースト硬化体のフライアッシュ反応率の経時変化	2-26
図 2.2-21	CH 生成量と CSH 生成量の関係	2-27
図 2.2-22	水銀累積圧入曲線 (破線) 及び細孔径分布 (実線) (※は昨年度実施の結果で、 測定装置はマイクロトラックベル社製 Pascal を使用)	2-29
図 2.2-23	水銀圧入法に基づく細孔径分布の区間毎の経時変化率.....	2-29
図 2.2-24	水銀累積圧入曲線 (破線) 及び細孔径分布 (実線)	2-30
図 2.2-25	水銀圧入法に基づく細孔径分布の区間毎の経時変化率.....	2-30
図 2.2-26	水蒸気吸着等温線の経時変化 (※は昨年度実施の結果で、測定装置はマイクロ トラックベル社製の BELSORP-aqua もしくは BELSORP-maxII を使用)	2-31
図 2.2-27	水蒸気累積吸着量曲線 (破線) 及び細孔径分布 (実線)	2-32
図 2.2-28	細孔径分布の区間ごとの経時変化率.....	2-32
図 2.2-29	水蒸気累積吸着量曲線 (破線) 及び細孔径分布 (実線)	2-33
図 2.2-30	細孔径分布の区間ごとの経時変化率.....	2-33
図 2.2-31	水銀圧入法 (破線) と水蒸気吸着法 (実線) に基づく細孔径分布の比較.....	2-34
図 2.2-32	H30 プレーンセメントペースト硬化体 (材齢 91 日) に対する水蒸気吸着等温線と 窒素吸着等温線の比較.....	2-34
図 2.2-33	X 線小角散乱プロファイル (SPring-8、実験室機)	2-36
図 2.2-34	H30 プレーン、H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の X 線小角散乱 プロファイル (実線: 測定結果、破線: 解析結果)	2-37
図 2.2-35	H30 プレーンセメント 413 日材齢の AFM 像	2-38
図 2.2-36	H30 プレーンセメントの TEM 像 (暗部が CSH 粒子、明部が空隙を表す)	2-39
図 2.2-37	H30 プレーン、H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の X 線小角散乱 プロファイル (実線: 測定結果、破線: 解析結果)	2-40
図 2.2-38	TMS 化法の処理手順	2-42
図 2.2-39	NMR 法において想定するケイ酸 (Al を含む) アニオン骨格	2-45
図 2.2-40	H30 プレーンセメントの ^{29}Si -NMR スペクトルの経時変化	2-47
図 2.2-41	波形分離結果の経時変化割合.....	2-48
図 2.2-42	H30 プレーンセメントペースト硬化体の ^{27}Al -NMR スペクトル.....	2-48
図 2.2-43	H31 プレーンセメントの ^{29}Si -NMR スペクトルの経時変化	2-49

図 2.2-44	波形分離結果の経時変化割合.....	2-49
図 2.2-45	H31 プレーンセメントペースト硬化体の ²⁷ Al-NMR スペクトル.....	2-50
図 2.2-46	H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の ²⁹ Si-NMR スペクトルの経時変化	2-51
図 2.2-47	波形分離結果の経時変化割合.....	2-52
図 2.2-48	H30 フライアッシュ混合セメントペーストの ²⁷ Al-NMR スペクトル.....	2-52
図 2.2-49	H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の ²⁹ Si-NMR スペクトルの経時変化	2-53
図 2.2-50	波形分離結果の経時変化割合.....	2-54
図 2.2-51	H31 フライアッシュ混合セメントペーストの ²⁷ Al-NMR スペクトル.....	2-54
図 2.3- 1	ベントナイト系材料の性能評価における鉱物モデルの位置付け	2-58
図 2.3- 2	二次鉱物の分類に係るフロー.....	2-69
図 2.3- 3	溶液濃度 0.5~3.0 M の KOH 溶液及び NaOH 溶液へ浸漬した Kinney bentonite (<0.1 μ m) 及び Wyoming bentonite (<0.1 μ m) の XRD 測定より算出した膨潤性 (Expandability (%)) の比較 (Eberl et al. (1993)の温度 35°Cの試験結果を図化)	2-72
図 2.3- 4	④が 60°C、3.0 M の KOH 溶液、○60 が 0.5 M の KOH 溶液、 ○61 が 1.0 M の KOH 溶液に浸漬した結果 (Eberl et al. (1993)の Fig.4)	2-72
図 2.3- 5	イライト化率の経時変化 ((a) 反応温度 35°C、(b) 反応温度 60°C)	2-73
図 2.3- 6	AFM 観察による粒子の積層方向の高さ分布	2-73
図 2.3- 7	Si、Mg、Ca 濃度と pH の関係並びに M-S-H、C-S-H、ブルーサイト及び アモルファスシリカの溶解度.....	2-75
図 2.3- 8	ゼオライト及び K-feldspar の安定相図.....	2-76
図 2.3- 9	ゼオライトの安定相図.....	2-78
図 2.3- 10	ケイ酸カルシウム水和物の存在形態.....	2-79
図 2.3- 11	計算体系.....	2-82
図 2.3- 12	0 年及び 1,000 年時点におけるセメント (OPC) の鉱物組成及び pH の分布	2-88
図 2.3- 13	ケース 1 の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-90
図 2.3- 14	ケース 1 の透水係数 (1,000 年後)	2-90
図 2.3- 15	ケース 2 ③の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-91
図 2.3- 16	ケース 2 ④の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-91
図 2.3- 17	ケース 1 ①、②とケース 2 ③、④の Cell 1 における鉱物の経時変化	2-92
図 2.3- 18	ケース 1 ①、②とケース 2 ③、④の Si 濃度経時変化の比較.....	2-92
図 2.3- 19	ケース 1 ①、②とケース 2 ③、④の pH 経時変化の比較.....	2-93
図 2.3- 20	ケース 1 ①、②とケース 2 ③、④の飽和指数 (SI) 経時変化の比較.....	2-93
図 2.3- 21	ケース 2 の透水係数 (1,000 年後)	2-93
図 2.3- 22	ケース 3 ⑤の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-94
図 2.3- 23	ケース 3 ⑥の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-94
図 2.3- 24	ケース 3 ⑤及び⑥の Cell 1 における鉱物の経時変化.....	2-95

図 2.3- 25	ケース 2 ③、④とケース 3 ⑤、⑥の pH 経時変化の比較.....	2-95
図 2.3- 26	ケース 2 ③、④とケース 3 ⑤、⑥の Si 濃度経時変化の比較.....	2-95
図 2.3- 27	ケース 2 ③、④とケース 3 ⑤、⑥の Al 濃度経時変化の比較.....	2-96
図 2.3- 28	ケース 2 ③、④とケース 3 ⑤、⑥の飽和指数 (SI) 経時変化の比較.....	2-96
図 2.3- 29	ケース 3 の透水係数 (1,000 年後)	2-96
図 2.3- 30	ケース 4 ⑦及び⑧の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-97
図 2.3- 31	ケース 4 ⑨の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-98
図 2.3- 32	ケース 4 ⑩の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-98
図 2.3- 33	ケース 4 ⑦～⑩の Cell 1 における鉱物の経時変化.....	2-99
図 2.3- 34	ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の pH 経時変化の比較.....	2-99
図 2.3- 35	ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の Si 濃度経時変化の比較.....	2-100
図 2.3- 36	ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の Al 濃度経時変化の比較.....	2-100
図 2.3- 37	ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の飽和指数 (SI) 経時変化の比較	2-100
図 2.3- 38	ケース 4 の透水係数 (1,000 年後)	2-101
図 2.3- 39	ケース 5 ⑪の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-102
図 2.3- 40	ケース 5 ⑫の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-102
図 2.3- 41	ケース 5 ⑪及び⑫の Cell 1 における鉱物の経時変化.....	2-102
図 2.3- 42	ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の pH 経時変化の比較.....	2-103
図 2.3- 43	ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の Si 濃度経時変化の比較.....	2-103
図 2.3- 44	ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の Al 濃度経時変化の比較.....	2-103
図 2.3- 45	ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の Mg 濃度経時変化の比較	2-104
図 2.3- 46	ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の飽和指数 (SI) 経時変化の比較	2-104
図 2.3- 47	ケース 5 の透水係数 (1,000 年後)	2-104
図 2.3- 48	ケース 6 ⑬の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-105
図 2.3- 49	ケース 6 ⑭の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)	2-106
図 2.3- 50	ケース 6 ⑬及び⑭の Cell 1 における鉱物の経時変化.....	2-106
図 2.3- 51	ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の pH 経時変化の比較.....	2-106
図 2.3- 52	ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の Si 濃度経時変化の比較.....	2-106
図 2.3- 53	ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の Al 濃度経時変化の比較.....	2-107
図 2.3- 54	ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の飽和指数 (SI) 経時変化の比較.....	2-107
図 2.3- 55	ケース 6 の透水係数 (1,000 年後)	2-107
図 3.2-1	SR-PSU および SR-Site における地下水流動解析の基本情報.....	3-3
図 3.2-2	SR-PSU および SR-Site における岩盤に対する水理地質構造の不確かさ・ 不均質性の考え方.....	3-4
図 3.2-3	Global warming climate case における気候変動の設定	3-5
図 3.2-4	RLDM によるレゴリス (表土) の評価結果.....	3-5
図 3.2-5	核種輸送と線量計算のための解析・モデル及びデータ	3-6
図 3.2-6	2100 年以降の海水準変動の予測.....	3-7

図 3.2-7	グローバルな平均気温の上昇による数千年後の海水準変動への寄与	3-7
図 3.2-8	氷のボリュームの変動.....	3-8
図 3.2-9	将来の CO2 濃度の設定	3-9
図 3.2-10	将来の海水準変動.....	3-10
図 3.2-11	POSIVA による将来 1 万年間の海水準変動の評価結果	3-10
図 3.2-12	酸素同位体比から推定した過去 90 万年間の相対的な海水準変動曲線	3-10
図 3.2-13	将来の海水準変動の不確かさに対するケース設定	3-12
図 3.3-1	隆起・侵食および海水準変動に伴い想定される変化.....	3-13
図 3.3-2	JAEAsmtp での領域設定と考慮できる事象	3-14
図 3.3-3	不確かさを考慮した現在～将来の地形変化・地下水流動・核種移行解析の流れ	3-14
図 3.3-4	対象地域（標高および水系）	3-16
図 3.3-5	対象地域（地質分布）	3-16
図 3.3-6	Chappell(1994)の海水準変動と平成 29 年度報告書で設定した海水準変動の違い	3-16
図 3.3-7	不確かさの設定（隆起速度）	3-17
図 3.3-8	地質係数と岩石強度の関係.....	3-17
図 3.3-9	将来の海水準変動のケース設定.....	3-17
図 3.3-10	谷底侵食低地の幅の評価位置（Sect. 1～3）	3-18
図 3.3-11	過去～現在の地形変化評価の流れ.....	3-18
図 3.3-12	古地形の推定結果（基本ケース）	3-20
図 3.3-13	推定した古地形～現在の評価結果（基本ケース）	3-21
図 3.3-14	現在～将来の地形変化の評価結果（標高・沖積層厚さ・水系網）（ケース A-1） （汀線の変動幅：赤線（10.8 万年後）、青線（12 万年後））	3-23
図 3.3-15	現在の地形勾配および 12.5 万年間の勾配変化量.....	3-23
図 3.3-16	基本ケース（A-1）との標高差（海水準変動の不確かさ）	3-24
図 3.3-17	基本ケース（A-1）との標高差（地形変化評価の不確かさ）	3-24
図 3.3-18	地質及び地形の違いを考慮した代表的な領域の設定.....	3-25
図 3.3-19	代表領域における地形勾配の経時変化（ケース A-1～5）	3-25
図 3.3-20	代表領域における地形勾配の経時変化（ケース A, B, C, D-1）	3-26
図 3.3-21	10.8 万年後・12.5 万年後の離隔距離（全ケースの平均値・標準偏差）	3-28
図 3.3-22	汀線の変動範囲（全ケース）（背景：現在の標高）	3-28
図 3.3-23	地下水流動解析（解析体系）	3-30
図 3.3-24	不飽和低減特性の設定.....	3-31
図 3.3-25	各時刻の流速・塩分濃度分布（A-1）	3-32
図 3.3-26	各時刻の流速・塩分濃度分布（A-4）	3-33
図 3.3-27	代表点の位置（沿岸域）	3-33
図 3.3-28	代表点における流速・塩分濃度の経時変化（沿岸域）	3-34
図 3.3-29	代表点の位置（内陸部）	3-35
図 3.3-30	代表点における流速の経時変化（内陸部）	3-35

図 3.3-31	埋設深度における流速・塩分濃度の平均値および標準偏差.....	3-36
図 3.3-32	中深度処分の埋設施設の構造イメージ.....	3-38
図 3.3-33	選定した2地点（位置①、②）（地質分布図上で表示）.....	3-39
図 3.3-34	選定した2地点（位置①、②）の拡大図（標高分布図上で表示）.....	3-39
図 3.3-35	選定した2地点（位置①、②）の拡大図（地質分布図上で表示）.....	3-39
図 3.3-36	地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較（鳥瞰図・位置①）.....	3-42
図 3.3-37	地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較（X-Y、X-Z・位置①）.....	3-43
図 3.3-38	地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較（鳥瞰図・位置②）.....	3-44
図 3.3-39	地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較（X-Y、X-Z・位置②）.....	3-44
図 3.3-40	Case 別の移行距離の時間変化.....	3-45
図 3.3-41	人工バリアからの移行フラックスの時間変化（Case 1～4）.....	3-51
図 3.3-42	Case 別の天然バリアからの移行フラックスの時間変化.....	3-53
図 3.3-43	Case 1 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス.....	3-54
図 3.3-44	Case 2 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス.....	3-54
図 3.3-45	Case 3 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス.....	3-55
図 3.3-46	Case 4 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス.....	3-55
図 3.3-47	被ばく線量評価結果（河川水利用経路）.....	3-56
図 3.4-1	SR-PSU での処分場スケールの領域範囲の検討（汀線位置）(3).....	3-58
図 3.4-2	透水性が低いケースに対するリファレンスケースとの相対誤差（汀線位置：X）..	3-59
図 3.4-3	透水性が低いケースに対するリファレンスケースとの相対誤差（汀線位置：Y）..	3-59
図 3.4-4	中深度処分における埋設施設の構造イメージ(1).....	3-61
図 3.4-5	レファレンスケースとの相対誤差（密度を考慮した全水頭）.....	3-62
図 3.4-6	坑道からの移行経路への影響.....	3-62
図 3.4-7	処分場スケール（解析モデル）.....	3-63
図 3.4-8	処分場スケール（メッシュ分割および水理定数）.....	3-64
図 3.4-9	坑道表面からの移行経路（EDZ なし）（垂直）.....	3-65
図 3.4-10	坑道表面からの移行経路（EDZ あり）（垂直）.....	3-65
図 3.4-11	坑道表面からの移行時間（垂直）.....	3-65
図 3.4-12	坑道表面からの平均流速（垂直）.....	3-66
図 3.4-13	坑道表面からの移行経路（EDZ なし）（平行）.....	3-66
図 3.4-14	坑道表面からの移行経路（EDZ あり）（平行）.....	3-66
図 3.4-15	坑道表面からの移行時間（平行）.....	3-67
図 3.4-16	坑道表面からの平均流速（平行）.....	3-67
図 3.5-1	上北地域における隆起速度の推定.....	3-70
図 3.5-2	計測した平均侵食速度と藤原ほか（1999）による推定値の比較.....	3-71
図 3.5-3	集約後の地質図　メッシュ間隔　10km.....	3-71
図 3.5-4	収集した地質断面図.....	3-72
図 3.5-5	新生代東北本州弧地質資料集 No.8（蟹田）.....	3-73

図 3.5-6	岩石海岸の模式断面.....	3-75
図 3.5-7	海水準停滞時の地形変化の応答解析結果.....	3-76
図 3.5-8	海水準低下時の地形変化の応答解析結果.....	3-76
図 3.5-9	上北地域における断面の位置（図内数値：隆起速度）	3-77
図 3.5-10	評価結果（断面 1）	3-78
図 3.5-11	下北半島～太平洋岸の断面図.....	3-79
図 3.5-12	断面 2 での海成段丘の分布.....	3-79
図 3.5-13	評価結果（断面 2）（陸域）	3-80
図 3.5-14	評価結果（断面 2）（海域）	3-80
図 3.5-15	富岡における屈折解析の例.....	3-81
図 3.5-16	波のエネルギーF と海食崖後退速度 q との関係.....	3-81
図 3.5-17	海水温と波のエネルギーの関係.....	3-81
図 3.5-18	波のエネルギー減衰係数.....	3-82
図 3.5-19	断面 1 および断面 2 の評価結果（気候項を考慮）	3-82
図 4.1-1	Sandwich-concept のイメージ図	4-2
図 4.2-1	ケース①におけるブロック頂部の高さの経時変化.....	4-9
図 4.2-2	ブロック（直径 55 mm）の膨潤の様子.....	4-10
図 4.2-3	膨潤後のブロックの有効モンモリロナイト密度と透水係数の関係	4-11
図 4.2-4	複数のブロックを不均質に積み上げた場合のブロックの膨潤の様子	4-12
図 4.2-5	ブロックを不均質に積み上げた場合の有効モンモリロナイト密度と透水係数の関係	4-13
図 4.2-6	試験①のブロック 1 つのケースにおけるブロックの膨潤の様子	4-14
図 4.2-7	アクリル管内から回収したブロック（試験①のブロック 1 つのケース）	4-15
図 4.2-8	試験①のブロック 2 つのケースにおけるブロックの膨潤の様子	4-15
図 4.2-9	斜め孔に積み上げた場合のブロックの透水係数と有効モンモリロナイト密度の関係	4-16
図 4.2-10	試験①のブロック 2 つのケースにおいてアクリル管内から回収したブロック	4-16
図 4.2-11	試験②のブロックを 1 つ投入したケースのブロックの膨潤の様子	4-17
図 4.2-12	試験②のブロックを 4 つ投入したケースのブロックの膨潤の様子	4-17
図 4.2-13	試験②のブロックを 1 つ投入したケースにおいてブロックに発生した割れ目	4-18
図 4.2-14	試験②のブロックを 4 つ投入したケースにおいてブロックに発生した割れ目	4-18
図 4.2-15	塩水条件下におけるブロックの膨潤の様子.....	4-20
図 4.2-16	水質を変化させた場合のブロックの有効モンモリロナイト密度と透水係数の関係	4-21
図 4.2-17	0.6 MPa の水圧条件下におけるブロックの膨潤の様子	4-22
図 4.2-18	加圧条件の場合のブロックの有効モンモリロナイト密度と透水係数の関係	4-22
図 4.3-1	閉鎖確認実証試験の作業エリア（深度 300m ステージ）	4-25
図 4.3-2	フローメータ・BTV 検層の概略図と実施状況.....	4-25
図 4.3-3	BTV 検層結果（10.0～26.0 mabh）	4-26

図 4.3-4	フローメータ検層結果（左）および湧水量計測結果（右）	4-27
図 4.3-5	定圧注水試験装置の概略図.....	4-28
図 4.3-6	各区間の湧水圧、湧水量および透水係数.....	4-29
図 4.3-7	ボーリング孔の状況を踏まえたレイアウト設計の概念図.....	4-30
図 4.3-8	4.2 において実施した室内試験の結果.....	4-31
図 4.3-9	閉塞状況確認方法の概念（昨年度の報告書）	4-32
図 4.3-10	閉塞材挿入プローブ（左：組立前、右：組立後）	4-33
図 4.3-11	閉塞材定置前後の定圧注水試験の結果.....	4-35

表目次

	頁
表 1.3-1 X線小角散乱による平均空隙又は粒子径の解析結果.....	1-6
表 1.3-2 分類した二次鉱物の一覧.....	1-8
表 1.3-3 わが国における沿岸域での地下水流動評価の基本的考え方に関する留意点の整理.....	1-10
表 1.3-4 不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（領域別）.....	1-12
表 1.3-5 不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（要因別）.....	1-13
表 1.3-6 不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響（領域別）	1-15
表 1.3-7 不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響（要因別）	1-15
表 2.2-1 使用材料の仕様.....	2-4
表 2.2-2 セメント評価項目一覧.....	2-4
表 2.2-3 セメントの密度、ブレン値、粒度分布.....	2-5
表 2.2-4 セメントの圧縮強度、曲げ強さ.....	2-5
表 2.2-5 使用したセメントの化学組成 (mass%).....	2-6
表 2.2-6 リートベルト解析に基づくセメントの鉱物組成.....	2-6
表 2.2-7 セメントのリートベルト解析に用いた結晶構造データ一覧.....	2-7
表 2.2-8 発熱特性のまとめ.....	2-8
表 2.2-9 使用材料（フライアッシュ）の仕様.....	2-9
表 2.2-10 フライアッシュ評価項目一覧.....	2-9
表 2.2-11 フライアッシュの密度、ブレン値、粒度分布.....	2-10
表 2.2-12 使用したフライアッシュの化学組成 (mass%).....	2-11
表 2.2-13 フライアッシュのリートベルト解析に用いた結晶構造データ一覧.....	2-12
表 2.2-14 フライアッシュの鉱物組成.....	2-12
表 2.2-15 GEMS 計算の初期化学組成.....	2-13
表 2.2-16 H30 プレーンセメントペースト硬化体の GEMS 計算結果（単位水量変数）.....	2-13
表 2.2-17 H31 プレーンセメントの GEMS 計算結果（単位水量変数）.....	2-14
表 2.2-18 H30FA 混合の GEMS 計算結果（FA=25 g、単位水量変数）.....	2-15
表 2.2-19 H30FA 混合の GEMS 計算結果（FA=43 g、単位水量変数）.....	2-15
表 2.2-20 H30FA 混合の GEMS 計算結果（FA=54 g、単位水量変数）.....	2-16
表 2.2-21 H30FA 混合で FA 量 43 g、水量 73 g とした GEMS 計算結果.....	2-16
表 2.2-22 H30FA 混合で FA 量 43g、水量 74.7 g とした GEMS 計算結果.....	2-17
表 2.2-23 分析に供した供試体の配合.....	2-17
表 2.2-24 TG-DTA に基づく硬化体の CH 量、強熱減量.....	2-22
表 2.2-25 選択溶解違法に基づくフライアッシュ反応率.....	2-22
表 2.2-26 X線小角散乱に基づく空隙または粒子径.....	2-38
表 2.2-27 X線小角散乱に基づく空隙または粒子径.....	2-40

表 2.2-28	TMS による重合度分布分析結果 (H30 プレーンセメントペースト硬化体)	2-42
表 2.2-29	TMS による重合度分布分析結果 (H31 プレーンセメントペースト硬化体)	2-43
表 2.2-30	TMS による重合度分布分析結果 (H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)	2-44
表 2.2-31	TMS による重合度分布分析結果 (H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)	2-44
表 2.2-32	²⁹ Si-NMR の測定条件	2-46
表 2.2-33	²⁷ Al-NMR の測定条件	2-46
表 2.2-34	²⁹ Si-NMR のシグナル位置初期値	2-46
表 2.2-35	²⁹ Si-NMR の波形分離結果 (H30 プレーンセメントペースト硬化体)	2-47
表 2.2-36	²⁷ Al-NMR 波形分離結果 (H30 プレーンセメントペースト硬化体)	2-48
表 2.2-37	²⁹ Si-NMR の波形分離結果 (H31 プレーンセメントペースト硬化体)	2-49
表 2.2-38	²⁷ Al-NMR 波形分離結果 (H31 プレーンセメントペースト硬化体)	2-50
表 2.2-39	²⁹ Si-NMR の波形分離結果 (H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)	2-51
表 2.2-40	²⁷ Al-NMR 波形分離結果 (H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)	2-52
表 2.2-41	²⁹ Si-NMR の波形分離結果 (H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)	2-53
表 2.2-42	²⁷ Al-NMR 波形分離結果 (H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)	2-54
表 2.3-1	地球化学計算に使用する鉱物モデル、熱力学データ/反応速度データの例	2-59
表 2.3-2	現行の鉱物リスト	2-60
表 2.3-3	国内外の機関等で設定している鉱物の比較	2-63
表 2.3-4	文献調査の条件等	2-67
表 2.3-5	抽出した二次鉱物	2-68
表 2.3-6	分類した二次鉱物の一覧	2-81
表 2.3-7	計算で使用した地下水組成	2-83
表 2.3-8	初期セメント組成	2-83
表 2.3-9	初期ベントナイト組成	2-83
表 2.3-10	Montmorillonite 及び Quartz の溶解速度式及びパラメータ	2-84
表 2.3-11	評価ケース及び設定する二次鉱物	2-87
表 3.2-1	主な調査文献 (解析方法・モデル)	3-2
表 3.2-2	主な調査文献 (海水準変動)	3-6
表 3.2-3	次の氷期最盛期の推定結果と推定方法	3-8
表 3.2-4	IPCC 第 5 次報告書による数百年スケールの海水準変動	3-9
表 3.2-5	CO ₂ に対するケース設定	3-9
表 3.2-6	わが国における沿岸域での地下水流動評価の基本的考え方に関する留意点の整理	3-11
表 3.2-7	諸外国の既往評価に基づくグローバルな海水準変動に対する考え方・留意点	3-11
表 3.2-8	将来の海水準変動の不確かさに対するケース設定	3-12

表 3.3-1	拘束条件の例.....	3-15
表 3.3-2	不確かさの設定（地質係数）	3-17
表 3.3-3	拘束条件の設定値.....	3-18
表 3.3-4	パラメータ評価の流れ.....	3-19
表 3.3-5	パラメータの推定結果（古地形の推定）	3-19
表 3.3-6	拘束条件の値（古地形の推定）	3-19
表 3.3-7	パラメータの推定結果（現在の地形の再現）	3-20
表 3.3-8	拘束条件の値（現在の地形の再現）	3-21
表 3.3-9	解析ケース（現在～将来の地形変化）	3-22
表 3.3-10	不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（領域別）	3-27
表 3.3-11	不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（要因別）	3-27
表 3.3-12	地下水流動解析（境界条件）	3-30
表 3.3-13	対象地域に対する水理定数の設定.....	3-31
表 3.3-14	不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響（領域別）	3-36
表 3.3-15	不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響（要因別）	3-36
表 3.3-16	核種移行解析のケース設定.....	3-40
表 3.3-17	各地質单元に対する地質区分と間隙率.....	3-41
表 3.3-18	評価対象核種のインベントリ（廃棄体グループ別）	3-46
表 3.3-19	廃棄体グループ別の廃棄体発生量.....	3-46
表 3.3-20	中深度処分埋設施設における人工バリアの寸法設定値.....	3-46
表 3.3-21	各バリアのパラメータ設定値.....	3-47
表 3.3-22	放射化金属等の溶出率の既往文献における設定値.....	3-49
表 3.3-23	本評価における金属廃棄物等の溶出率及び溶出期間の設定値と設定根拠.....	3-49
表 3.3-24	セメント系材料層（コンクリートピット、低拡散層）における溶解度	3-50
表 3.3-25	セメント系材料層（コンクリートピット、低拡散層）における実効拡散係数	3-50
表 3.3-26	ベントナイト系材料層（低透水層）における実効拡散係数.....	3-50
表 3.3-27	地下水水質別収着分配係数.....	3-51
表 3.3-28	各ケースでの核種別のピーク発生時間と移行フラックス	3-53
表 3.4-1	解析条件（広域スケール・サイトスケール）	3-60
表 3.4-2	各廃棄体グループに必要な定置領域と坑道本数（坑道長さ：500m）	3-61
表 3.4-3	人工バリアに対する水理定数の設定値.....	3-64
表 3.5-1	評価に必要なデータの選定結果（地形変化評価）	3-69
表 3.5-2	評価に必要なデータの選定結果（地下水流動解析）	3-69
表 3.5-3	評価に必要なデータの選定結果（核種移行解析）	3-70
表 3.5-4	推定した地質係数.....	3-72
表 3.5-5	対象地域の透水係数の検討結果.....	3-73

表 3.5-6	間隙率の検討結果.....	3-74
表 3.5-7	比貯留係数の検討結果.....	3-74
表 4.1-1	モニタリングに係る判断項目、確認内容、課題（地質環境調査段階）	4-4
表 4.1-2	モニタリングに係る判断項目、確認内容、課題（処分場の建設・操業・閉鎖段階）	4-5
表 4.1-3	モニタリングに係る判断項目、確認内容、課題（廃止措置段階）	4-6
表 4.2-1	水道水の水質組成.....	4-14
表 4.2-2	地下水の水質組成.....	4-20

1. 序論

1.1 まえがき

原子力規制委員会原子力規制庁（以下「規制庁」という。）は、これまでに廃棄物埋設に係る委託事業において、中深度処分の地下水流動評価又は核種移行評価が必要な領域である、廃棄物埋設地、それを設置する周辺の地盤及びそれらを含む広域に関して、人工バリア及び天然バリア中の核種移行評価に関する科学的・技術的知見の取得を行ってきている。

本事業では、中深度処分において考慮すべき評価対象とする期間における外部環境の変遷を踏まえた、人工バリア並びに天然バリアが有する核種移行に関する性能の評価（以下「性能評価」という。）について、科学的・技術的知見の取得を実施した。また、モニタリング設備の撤去に伴うボーリング孔の閉塞等において、放射性物質が移行しやすい経路が生じないように、適切に閉塞が行われることの確認等に係る科学的・技術的知見の取得を実施した。本事業では過年度の委託事業による性能評価に関する成果を参考に実施した。

実施項目を以下に示す。

- (1) 人工バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得
- (2) 天然バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得
- (3) 人工バリアの性能確認及び地下水等確認に関するモニタリング評価の妥当性に係る科学的・技術的知見の取得
- (4) 廃棄物埋設に関する研究に必要な国内外の情報収集

1.2 実施内容

- (1) 人工バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得

中深度処分においては、廃棄物埋設地からの放射性物質の漏出を合理的に達成できる限り十分に低減する人工バリアの設置が見込まれる。このためには、設置される環境において技術的に施工可能なものであることに加えて、廃棄物埋設地の外への主要な放射性物質の漏出を抑制する性能が優れたものを選定する必要がある。それを踏まえ、規制庁が人工バリアの長期性能評価の妥当性を判断するために必要な科学的・技術的知見を蓄積する観点から、以下に示す検討を行った。

- 1) 人工バリアの核種移行に係る長期の性能評価に関する科学的・技術的知見の取得

廃棄物埋設における人工バリアとしてセメント系及びベントナイト系人工バリアからなる多重バリアが想定されている。これらの人工バリアにおける長期間の核種移行を評価することが必要であることから、人工バリアにおける外部環境の変遷等における化学的変質等を考慮した性能評価が必要である。セメント系人工バリアについては、核種移行に寄与する細孔構造を的確に把握することが求められる。特に、セメント系の場合、水和反応を伴う材料であることから①時間経過に伴い細孔構造の物理化学的変化があること、及び②時間経過に伴う外部環境の変遷が細孔構造の物理化学的変化に影響を及ぼす可能性が高いことが想定されることから、長期間の時間経過による細孔構造の変化と核種移行への影響の評価が必要となる。そのためには、核種の漏えい抑止に係る規制要求に対し使用するセメント、混和材料、有機化学混和剤等のセメント構成材料による材料設計とそれを実現するための調合による細孔構造の評価と細孔構造を構成する CSH 水和物の安定性等を考慮した細孔構造の物理化学的変化を評価することが求められる。

本事業においては、従来から用いられるセメント硬化体の細孔構造の分析法である水銀

圧入法による評価に加え、ミクロレベルの細孔を分析する水蒸気吸着法等を導入し、径、形態等の細孔構造と核種移行への寄与について時間的な変化を踏まえた確認を行った。なお、この確認に当たっては、細孔構造の分析に有効と考えられる中性子小角散乱法や透過電子顕微鏡（TEM）やCSH水和物の安定性を評価する上で有効と考えられるTMS誘導体法や原子間力顕微鏡（AFM）等を用いた。

2) 人工バリアの長期性能を確保する材料設計に係る科学的・技術的知見の取得

中深度処分に係る廃棄物埋設地の設計においては、人工バリアは300年を超える長期にわたり放射性核種の移行を抑制する性能を有する必要がある。そのためには、人工バリアの設計が重要な役割を有しており、その設計過程の妥当性を評価することが求められる見込みである。特に主要な放射性核種の移行を抑制するためには、使用する材料を適切に選択する材料設計及び部材としての性能を確保する構造設計の両方の設計が必要と考えられる。このような設計は、要求性能に対する設計目標値を明確にしなければ行えないため、要求性能と設計目標値の関係性の設定に関する科学的・技術的知見の取得が必要である。

本事業では、ベントナイト系材料とセメント系材料とが地下水を介して接触することによる鉱物の溶解や生成・沈殿がベントナイト系人工バリアの長期性能に与える影響について、その妥当性判断に必要となるベントナイト系材料とセメント系材料の界面で発生する可能性がある鉱物（以下「二次鉱物」という。）の溶解や生成・沈殿の化学反応及びそれによる放射性核種の移行を抑制する性能への影響の程度に関する科学的・技術的知見を取得した。具体的な実施内容は以下のとおりである。

- ① 平成21年度⁽¹⁾までの委託事業で作成したベントナイト/セメント相互作用に係る鉱物モデル（地球化学計算の際に考慮する鉱物のリスト）（以下「現行の鉱物リスト」という。）について、諸外国の機関等で地球化学計算の際に設定されている鉱物のリストとの比較を行い、現行の鉱物リストで設定されていない鉱物等の抽出を行った。また、天然事例や人工類似物に係る研究も含めた最新の既往研究を調査し、ベントナイト系材料やセメント系材料の主たる構成鉱物、並びに両者の界面で発生する可能性があると考えられる二次鉱物の溶解や生成・沈殿の化学反応に係る情報を整理した。
- ② ①の検討を踏まえて、現行の鉱物リストにおいて設定している二次鉱物の妥当性について検討し、放射性核種移行制性能への影響の程度に関する知見及び地球化学計算を行う際に留意すべき事項を取りまとめた。

(2) 天然バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得

中深度処分の廃棄物埋設地の位置に関する設計については、合理的に設置可能な区域から、水理地質構造、地球物理・地球化学的環境等を踏まえて、廃棄物埋設地から生活圏への主要な放射性核種の移行を抑制する性能に優れた地盤が選定され、規制側は選定区域に廃棄物埋設地を設置した場合の性能評価の妥当性を適切に評価することが求められる。それを踏まえ、規制庁が天然バリアの長期にわたる核種移行に係る性能評価の妥当性を判断するために必要な科学的・技術的知見を蓄積する観点から、以下に示す検討を行った。

本事業においては、想定される自然現象として地殻変動による断層活動及び隆起・沈降等、気候変動における侵食等を考慮した地形の時間変化を考慮した地下水流動の評価及び核種移行の評価に係る科学的・技術的知見を取得した。特に、水理地質構造の不均一性・不均質性に加え、地形の時間変化の不確実性を考慮し、海水準変動の履歴による地下水への塩濃度の変化等を考慮した予察的評価における適用条件等の考え方、評価の妥当性についての科学的・技術的

知見の取得を実施した。

具体的には、過年度に整理した地形変化の評価手法に基づき、将来の侵食量等の不確かさを考慮した地形変化の評価結果を用い、塩濃度の変化も含めた非定常の三次元地下水流動評価の結果を反映した核種移行評価を実施した。これにより天然バリアの長期にわたる核種移行に係る性能評価の手法として整理し、評価の妥当性を判断するために必要な科学的・技術的知見の取得を実施した。また、将来において本事業で整理した長期にわたる地下水流動・核種移行に関する評価手法について検証を行うに当たって必要となる地質情報や地下水情報等の整理を、それらの情報が豊富に得られる地域を対象に行った。

(3) 人工バリアの性能確認及び地下水等確認に関するモニタリング評価の妥当性に係る科学的・技術的知見の取得

中深度処分においては、坑道等の閉鎖後においても廃止措置の開始までの間は、廃棄物埋設地からの放射性物質の異常な漏えいを監視・測定するためのモニタリング設備の設置が求められている。その際、モニタリング設備が人工バリア及び天然バリアの機能を著しく損なうことがないこと、モニタリング設備の撤去に際して放射性物質が移行しやすい経路が生じないよう撤去、閉塞を行うこと等を考慮した設計がなされることが重要である。同様に処分坑道及びアクセス坑道（以下「トンネル」という。）の閉塞についても放射性物質が移行しやすい経路が生じない設計が求められる。

このため、トンネル及び地質調査等のボーリング孔について、適切に閉塞が行われている経路閉鎖設計がされていることの確認（以下「閉鎖確認」という。）等に係る科学的・技術的知見の取得を実施した。

具体的には、トンネル及びボーリング孔の閉塞による閉じ込め性能を確保する経路閉鎖設計に係る妥当性判断及び閉鎖確認に資する観点から、妥当性評価指標の抽出とともに検証試験を実施し、放射性核種が移行しやすい経路が生じない経路閉鎖設計の妥当性確認に必要な科学的・技術的知見を取得した。特に、長期間の性能を求められるため、材料設計及び閉鎖確認の妥当性判断に資する科学的・技術的知見を取得した。

トンネル・ボーリング孔に関わる移行経路には、岩盤中の割れ目などの他に、トンネル・ボーリング孔の空洞、掘削時に近傍に生じ得る損傷領域（EDZ: Excavation Damage Zone や BDZ: Borehole Damage Zone）、トンネルの覆工コンクリート、ボーリング孔のケーシングなどの保坑・保孔部背面などが想定され、地質条件の違いや目的に応じて異なるトンネル・ボーリング孔の仕様（深さや径など）も踏まえて、様々な移行経路の閉鎖確認に係る課題の有無や内容、妥当性判断指標、重要性の程度について知見を順次整理していく必要がある。本事業では、トンネルに比べ、課題が多いと考えられるボーリング孔の閉塞（主に空洞部）に主眼を置き、以下の知見を取得・整理した。

結晶質岩などの割れ目媒体に掘削されたボーリング孔の空洞部の閉塞に関して、平成 30 年度事業で整理された代表的閉塞材料と埋戻し設計（ベントナイトや砂などを閉塞場所の環境条件に応じて配置する）により、経路閉鎖設計（特に材料設計及び閉鎖確認）の妥当性評価指標の抽出に係る室内試験と検証のための原位置試験を実施した。

室内試験では、経路閉鎖設計の妥当性を間接的に判断するための知見を得るため、(a)ベントナイトの膨潤途中に砂などの埋戻し材が施工された場合、(b)ベントナイトブロックが孔内に不均質に配置された場合、(c)異なる水質や水圧（流速）条件の場合、の各々に係る試験を行った。原位置試験では、瑞浪超深地層研究所の研究坑道の既存ボーリング孔（数 m～数十 m）を埋戻し対象として、当該ボーリング孔に適用可能な閉塞材挿入プローブの製作と孔空洞

部の閉塞試験を行い、これらの結果に基づき、ボーリング孔埋戻し後の孔空洞部の閉鎖の妥当性を直接的に判断するための科学的・技術的知見を抽出・整理した。

(4) 廃棄物埋設に関する研究に必要な国内外の情報収集

本事業の実施に当たっては、放射性廃棄物の核種移行に伴う安全評価、人工バリア性能の検討など、多岐にわたる高い専門性が必要となることから、適宜事業内容に関連する国内外の専門家と意見交換等を行い、事業成果の改良・精緻化を図った。

1.3 成果概要

1.3.1 人工バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得

1.3.1.1 人工バリアの核種移行に係る長期の性能評価に関する科学的・技術的知見の取得

①硬化体作製に使用する材料評価とセメントペースト硬化体の作製

セメント協会が販売するセメントである「研究用セメント」を購入して用いた。研究用セメントは原料に混和材料としても用いられる高炉スラグやフライアッシュ等のリサイクル材を使用しているものの、少量混合成分は含まれておらず、混和材料を含まないプレーン材料である。蛍光 X 線分析の結果、セメント結晶生成時の化学平衡への影響を及ぼすと考えられる Na, K 含有量はそれぞれ 0.31 wt%、0.41 wt%であった。昨年度製造した「純粋セメント」と比べて Na, K を有意に含有している。粉末 X 線回折とリートベルト解析の結果、研究用セメントは、純粋セメントに比べて Ca_3SiO_5 (単斜晶)が約 1.4 倍、 Ca_2SiO_4 (単斜晶)が約 0.7 倍と、異なる鉱物組成を持つことが分かった。鉱物組成の違いに応じ、水和発熱速度に差が生じた。よって、研究用セメントと純粋セメントで水和反応過程は異なると考えられ、Na, K 含有による水和反応への影響は見えない。市販されているセメントでは、JIS において 5% までの少量混合成分の添加が認められていることや原料として天然鉱石以外に一般産業廃棄物等のリサイクル材を用いていることにより、品質ばらつきや微量金属元素等の不純物などが水和物の不均一性・不安定性を引き起こす恐れが指摘されており、市販されているセメントを用いた硬化体の性能評価をする際は材料の化学組成や鉱物組成を考慮する必要があることがあらためて確認された。フライアッシュ (FA) は能代火力発電所産の製品を対象を絞って硬化体作製に使用している。粉末 X 線回折とリートベルト解析の結果、平成 31 年度に購入した FA は平成 30 年度に購入した FA に比べ非晶質量に富むことが分かった。

セメント系材料の人工バリアとしての基本性能を把握するために、研究用セメントを用いて混和材料や化学混和剤を添加しないプレーンセメントペースト硬化体を用意した。また、セメント系人工バリアにはフライアッシュを混合したセメントが用いられることが想定されるため、研究用セメントをベースにフライアッシュを混合したフライアッシュ混合セメントのペースト硬化体を用意した。なお、フライアッシュの添加量及び単位水量は、プレーンセメントとフライアッシュ混合セメントの硬化体について、CSH量を合わせた状態で細孔構造を比較することを考慮し、単位セメント量を一定にして熱力学的相平衡計算ソフト GEMS を用いて反応終局時の CSH 生成量を計算することで決定した。練混ぜは機械練り用練混ぜ機を用いて行い、ポリエチレン瓶に流し込み、ペーストが硬化するまでの間、材料分離を生じさせないためにローターで回転させた。養生温度は 20°C 一定とし、外部との水の出入りがない状態を保つためにポリ瓶に封緘して、反応開始から 28 日、91 日経過時に水和停止し、分析を実施した。また平成 30 年度に作製した「プレーンセメントペースト硬化体」及び「フライアッシュ混合セメントペースト硬化体」の材齢 413 日の試料についても分析を実施した。

②直接的・間接的手法による細孔構造の分析

水銀圧入法及び水蒸気吸着法を用いて細孔構造の間接的分析を行い、初期状態における経時変化についてそれぞれの手法で確認した。水銀圧入法及び水蒸気吸着法で得られた細孔径分布の比較を図 1.3-1に示す。プレーンセメントペースト硬化体とフライアッシュ混合セメントペースト硬化体共に、水銀圧入法と水蒸気吸着法の結果は一致せず、異なる細孔径分布を示した。この違いは、それぞれの手法で測定対象となっている空隙が異なるためと考えられる。CSHゲル内部のゲル空隙や層間空隙は、CSH層構造が持つ表面電位等に由来する電場勾配が存在する空間である。このような空隙に対して、 H_2O 等の極性を持つ分子の場合は層構造と電子のやり取りをし、可逆的な化学反応により侵入できるのに対し、 N_2 等の極性を持たない分子は反応を起こさなため侵入することができない。窒素と同様極性を持たない水銀はゲル空隙や層間空隙には入り得ず、毛細管空隙（水和物の隙間の物理的な空間）を測定していると考えられる。核種移行評価においては、細孔中の H_2O の物理化学的状态を考慮する必要があり、水蒸気吸着結果に基づく解釈は有効と考えられる。

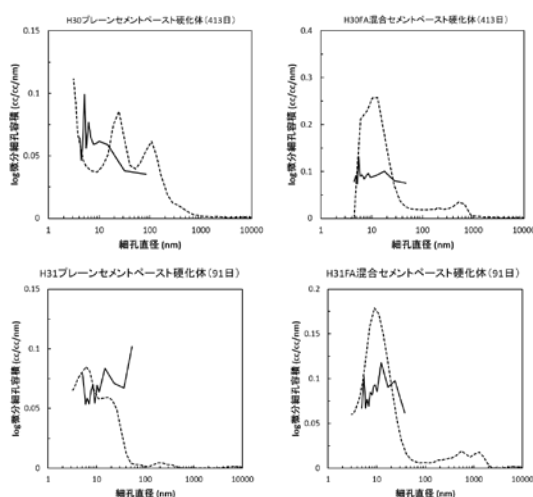


図 1.3-1 水銀圧入法（破線）と水蒸気吸着法（実線）に基づく細孔径分布の比較

X線小角散乱法を用いて、空隙又は粒子のサイズの測定を行った。H30プレーンセメントペースト硬化体及びH30フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、いずれも半径1.5 nm×長さ80 nmの大きさが得られた（図 1.3-2、表 1.3-1）。小角散乱の強度は、粒子と空隙の電子密度差（又は散乱長差）を反映したものとなり、得られるサイズが空隙のものか粒子のものか、小角散乱法単独では判断できない。そこでAFM及びTEM観察を行ったが、観察された空隙・粒子共にサイズや形態が類似しており、判断をつけるには至らず、課題となった。H31プレーンセメントペースト硬化体及びH31フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、材齢28日及び91日の試料について分析を行い、空隙又は粒子のサイズの経時変化を確認した結果、材齢経過に伴ってサイズが減少する傾向が見られた。今回平均サイズの解析までを行ったが、球形粒子を仮定し、CSHの化学組成が既知の場合には、径分布を求める解析式が先行研究によって提案されている。しかしながら、解析ソフトウェアが市販されているわけではなく、またTEM観察結果から空隙や粒子の形状を単純な球形とは仮定できないことから、今回は径分布の導出まで至らず、今後の課題となった。

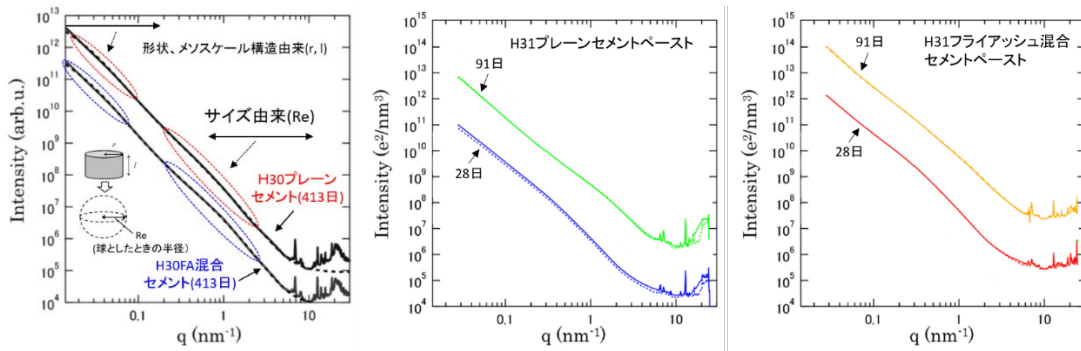


図 1.3-2 X線小角散乱プロフィール (実線: 測定結果、破線: 解析結果)

表 1.3-1 X線小角散乱による平均空隙又は粒子径の解析結果

(nm)	H30 プレーンセメントペースト硬化体	H30FA 混合セメントペースト硬化体	H31 プレーンセメントペースト硬化体		H31FA 混合セメントペースト硬化体	
	413 日	413 日	28 日	91 日	28 日	91 日
球平均直径	10.7	10.6	14.7	9.4	17.9	15.3
ディスク平均直径	83	80	86	78	101	124
ディスク平均厚さ	1.5	1.4	3.7	1.0	4.4	2.1

③CSH ゲルの安定性評価

CSH ゲルのケイ酸鎖構造について分析するため、トリメチルシリル誘導体化法 (TMS 法) 及び ^{29}Si -, ^{27}Al -NMR 法を用いて測定を行った。TMS 法では、プレーン及びフライアッシュ混合セメントでケイ酸鎖の重合度分布や平均重合度に明瞭な違いは認められなかった (図 1.3-3)。重合度分布は、材料は単量体が 90%以上を占めていたのに対し、水和反応後は 2 量体が主体となり平均重合度も 1.8~2.0 程度となっていたことから、セメントの水和反応により単量体から 2 量体への重合反応が起こっていることがわかった。H30 プレーンセメントペースト硬化体と H31 プレーンセメントペースト硬化体の重合度分布の違いについては、セメントの鉱物組成が大きく影響していると考えられ、Na, K 含有量の影響を確認することは出来なかった。 ^{29}Si -, ^{27}Al -NMR 法では CSH と CASH の構造の違いについて確認した。フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、材齢経過に応じて 4 配位 Al の積分値増加が見られ、Al がシロキサン結合鎖を架橋し CASH を生成していることが分かった。TMS 法と ^{29}Si -, ^{27}Al -NMR 法の結果について比較すると、TMS の結果はプレーンセメントペースト硬化体及びフライアッシュ混合セメントペースト硬化体共に 2 量体を主体としたシロキサン結合となっていることを示していた一方、 ^{29}Si -NMR においては 3 量体以上のシロキサン結合に帰属されるシグナルがプレーン・フライアッシュ混合共に優位に検出されており、TMS 法と NMR 法でシロキサン結合の解釈には矛盾が見られる。これは、 ^{29}Si -NMR の波形分離解析において設定している各化学結合環境の化学シフト値や半値幅等のパラメータや解析の収束条件が適切でないことを示唆していると考えられる。よって NMR の結果を定量的に活用するにあたっては、まだ技術的な検討が必要となる。

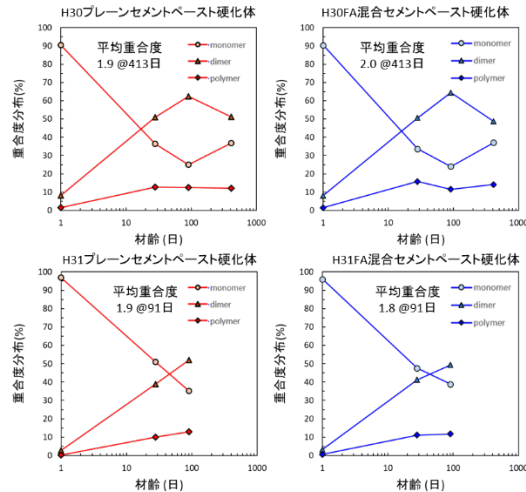


図 1.3-3 TMS 分析結果

1.3.1.2 人工バリアの長期性能を確保する材料設計に係る科学的・技術的知見の取得

①二次鉱物の溶解や生成・沈殿の化学反応に係る情報の整理に対する成果

現行の鉱物リストは、地球化学計算を実施し、室内実験での短期的現象及び長期的な天然事象（主にモンモリロナイトの溶解量）との整合性により検証がなされてきた。しかしながら、現行の鉱物リストでは設定していないが、処分場環境で生成する可能性のある鉱物が存在する。また、中深度処分におけるベントナイト系材料の性能評価では、設定する二次鉱物が当該バリア性能（低透水性）に与える影響を把握しておくことが、二次鉱物設定の妥当性を判断する上で重要な知見となる。そこで本事業ではまず、文献調査により考慮する可能性のある鉱物を網羅的に抽出するために、(a) 国内外の機関において考慮されている鉱物、(b) 室内試験、天然事例及び人工類似物に係る研究の最新知見の調査を行った。

(a) 国内外で考慮されている鉱物リスト

ベントナイト及びセメント系材料の相互作用により生成する可能性のある鉱物について、国内外の機関等で設定された鉱物モデルを調査し、それらで設定されている鉱物リストと現行の鉱物リストの比較を行い、網羅的に二次鉱物の抽出を行った。調査対象とした機関等は、日本^{(2),(3)}、スウェーデン⁽⁴⁾、フィンランド⁽⁵⁾、フランス⁽⁶⁾、スイス⁽⁷⁾に属するものである。

(b) 室内実験、天然事例及び人工類似物に係る研究の最新知見

文献を調査した結果、二次鉱物として生成が確認されている鉱物は、おおむね (a) 国内外で考慮されている鉱物リストに含まれていた。国内外の機関等で設定されていないが、室内実験等で生成が確認されている二次鉱物は、C-A-S-H ($x\text{CaO} \cdot y\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2 \cdot z\text{H}_2\text{O}$)、M-S-H ($x\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$) 及び Merliote であった。

②既往の鉱物モデルに選定されていた二次鉱物の妥当性に係る検討に対する成果

(a) 及び (b) の結果から抽出した二次鉱物リストについて、中深度処分を想定し、図 1.3-4 に示した二次鉱物を分類する手順に従い、(i) 設定しない鉱物、(ii) 設定する鉱物、(iii) 地球化学計算により、鉱物設定が透水性に与える影響について検討する鉱物（影響検討鉱物）に分類した。分類した結果を表 1.3-2 に示す。

当該分類を行う中で、現行の鉱物リストに設定していた二次鉱物について、中深度処分条件における生成可能性の観点から設定の妥当性を改めて確認した。国内外の機関等の鉱物リスト及び最新知見の調査結果から網羅的に抽出された鉱物のうち、中深度処分で考慮すべき二次鉱物として新たに追加されたのは、Illite、Clinochlore、M-S-H、C-A-S-H、Tobermorite、Jennite、Afwillite、C4AH13、C4AH19、Stratlingite、Monocarboaluminate、Monosulfate、Phillipsite、Heulandite、Clinoptilolite、Chabazite、K-feldspar、Dolomiteであった。また、現行の鉱物リストで設定されていた Laumontite については、熱力学的な観点から Chabazite が存在する場合には生成しないと考えられることから、Laumontite を鉱物リストから除外した。

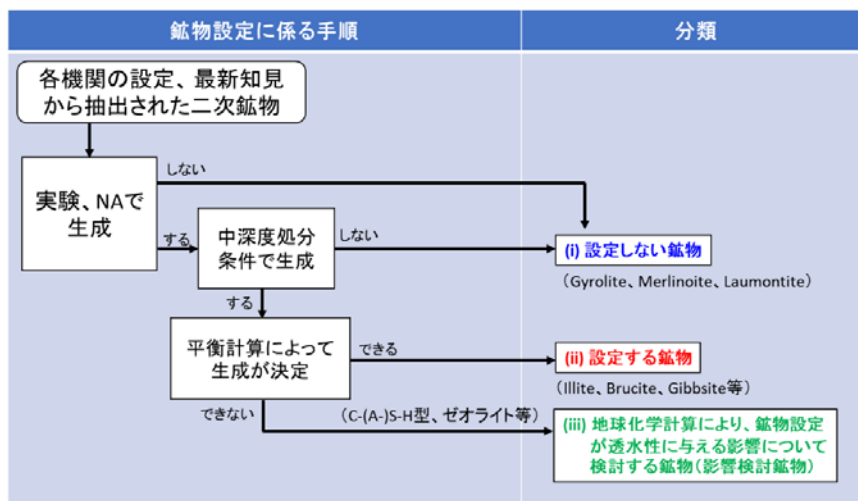


図 1.3-4 二次鉱物の分類に係るフロー

表 1.3-2 分類した二次鉱物の一覧

(青字：設定しない鉱物、赤字：設定する鉱物、緑字：影響検討鉱物)

分類	鉱物名	分類	鉱物名	分類	鉱物名
スメクタイト※	Beidellite	C-S-H型	C-S-H	ゼオライト	Phillipsite
	Saponite		Tobermorite		Heulandite
ケイ酸塩	Illite		Jennite		Clinoptilolite
	Kaolinite		Afwillite		Analcime
	Pyrophyllite		Gyrolite		Laumontite
長石	K-feldspar	水和物	C4AH13		Chabazite
水酸化物	Brucite		C4AH19		Merlinoite
	Gibbsite		Ettringite		
炭酸塩	Dolomite		Hydrotalcite	硫酸塩	Gypsum
Mgケイ酸塩	Clinochlore		Friedel's salt		
	Sepiolite		Stratlingite		
	M-S-H		Monocarboaluminate		
C-A-S-H型	Katoite		Hydrogarnet		
	C-A-S-H		Monosulfate		

上記に加えて、影響検討鉱物に分類した鉱物について、鉱物の設定の違いがモンモリロナイトの溶解及び透水係数に与える影響について地球化学計算を用いて検討した。この際、これまでベントナイトの変質評価において考慮されていなかった C-A-S-H ゲルを考慮したモデル⁷⁾を導入した。その結果、C-(A)-S-H 型鉱物を設定した場合 (図 1.3-5 右図)、熱力学的により安定な Tobermorite を設定した場合 (図 1.3-5 左図) よりもモンモリロナイトの溶解が進行すること

が明らかになり、C-(A)S-H ゲルの設定の重要性が示された。このことは、熱力学的に安定鉱物を設定することが必ずしも保守的な設定にはならないことに留意が必要であることを示した。

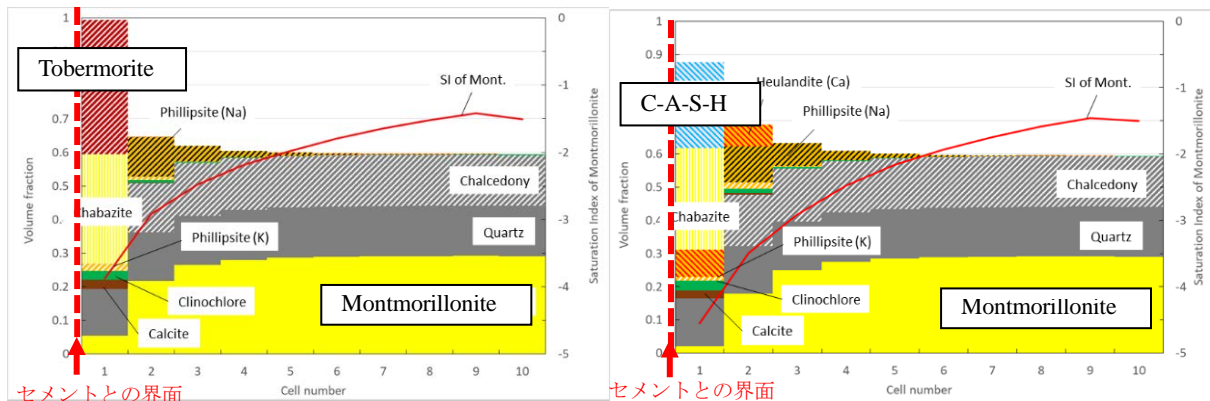


図 1.3-5 C-(A)S-H 型鉱物群として、Tobermorite を設定(左図)、C-A-S-H を設定(右図)

1.3.2 天然バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得

本事業では上述した背景のもと、「諸外国の既往情報に基づく評価手法の検討」、「広域における地形変化・地下水流動・核種移行解析」、「ニアフィールドにおける地下水流動解析」及び「上北地域を対象とした評価に向けた調査」を実施した。各項目の実施概要を以下に示す。

1.3.2.1 諸外国の既往情報の調査

中深度処分の安全評価における地下水流動・核種移行評価の妥当性確認に資するために、諸外国の既往情報を調査・整理するとともに、中深度処分における地形変化・地下水流動・核種移行の各評価及び将来の海水準変動の基本的考え方について検討した。

文献調査（解析方法・モデル：スウェーデン（SKB）の安全評価（SR-PSU, SR-Site）、将来の海水準変動：IPCC 等の既往評価）を行い、わが国の中深度処分の沿岸立地を対象とした各項目の基本的考え方に関する留意点を整理した。例として、地下水流動解析に関する調査結果概要を図 1.3-6 に、基本的考え方に関する留意点を表 1.3-3 に示す（その他：3 章）。

- 方法：空間的なスケールの異なる複数のモデルを用いた階層的な地下水流動解析（単一のモデルで表現できる情報量には限りがある、計算負荷の問題）


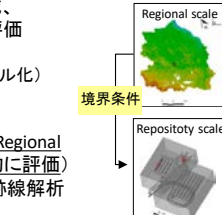

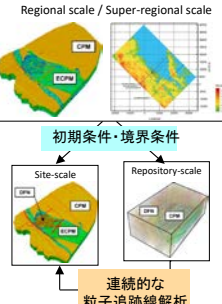
SR-PSU (低レベル)	<p>フォルスマルク発電所の沖合3kmの深さ60mの岩盤に建設</p> <p>・周辺バルト海の塩分濃度0.5%、将来海退で更に低下が予想</p> 	<ul style="list-style-type: none"> ● 目的: ①広域地下水流動の評価(フェアフィールドを含む領域、②の解析の境界条件の出力)、処分場からの移行評価 ②ニアフィールドの流動場 ● モデル: ①Regional scale (ポルト、サイロ、プラグのレベルのモデル化) / ②Repository scale (各構成材までモデル化) ● 領域範囲: ①10数kmスケール(分水嶺の範囲) ②数100mスケール(処分場の水理特性の変化がRegional scaleの流れに影響を与えない範囲として解析的に評価) ● 解析方法: ①飽和-不飽和定常解析(密度流なし)、粒子追跡線解析 ②飽和定常解析(密度流なし) 	 <p>境界条件</p>
SR-Site (高レベル)	<p>フォルスマルクで深さ約500mの岩盤中に処分する方針</p> <p>・バルト海の塩分濃度は低い、深い位置では塩分濃度が高い</p> 	<ul style="list-style-type: none"> ● 目的: ①広域地下水流動の評価(②、③の初期・境界条件) ②処分場からの移行評価(フェアフィールド) ③ニアフィールドの流動場・移行評価 ● モデル: ①Regional scale: 閉鎖後初期/Super-regional scale 閉鎖後長期(処分場・EDZはモデル化なし) / ②Site scale (処分孔以外はモデル化) / ③Repository scale (処分孔までモデル化) ● 領域範囲: ①Regional:10数kmスケール、Super-regional: 数10kmスケール(Ice frontの位置を考慮) ②10数kmスケール / ③数kmスケール ● 解析方法: ①飽和非定常解析(密度流あり)、粒子追跡線解析(②と③の移行経路の連続性を確保) →複数の時間における定常解析から非定常を模擬 	 <p>初期条件・境界条件</p> <p>連続的な粒子追跡線解析</p>

図 1.3-6 SR-PSU 及び SR-Site における地下水流動解析の基本情報

表 1.3-3 わが国における沿岸域での地下水流動評価の基本的考え方に関する留意点の整理

解析の目的	<ul style="list-style-type: none"> 中深度処分に係る地下水流動評価の目的は、SKBの既往評価と同様に、主に「①広域の地下水流動場の評価」、「②処分場から天然バリア、生活圏までの移行経路の評価」、「③処分場の構成要素の透水性を考慮した処分場内外の流動場・移行経路の評価」である
解析方法	<ul style="list-style-type: none"> わが国の沿岸域では、淡水地下水(内陸から海への流れ)、塩水地下水(密度差で淡水の下に潜り込む)及び汽水域(降雨や海水位の変動等による両者の混合)が存在するため、密度流を考慮した解析が必要 解析領域に河川、海域等の表層水系を含むため、隆起・侵食・堆積の地形変化による地下水流動場の変動の影響を示すことが必要。その際海水準変動による河川の下刻、海食等の経時変化の影響も考慮される必要がある 起伏のある地形の表層や比較的透水性の高い堆積層に対し飽和を仮定する評価は、現実的な地下水流動や浸出域と異なる可能性があり、地下水面の存在を基にした飽和・不飽和の評価がより適切 よって、沿岸域での地下水流動評価では、基本的に密度流、飽和・不飽和を考慮した解析がより現実的な評価であり、地形変化・海水準変動の影響を考慮した非定常解析*による流動場の評価がより適切
モデル化	<ul style="list-style-type: none"> 広域までの密度流を考慮した非定常解析を詳細なメッシュにより、①～③の評価を行うことは計算負荷の問題から現実的に不可能であり、SKBのように、広域スケール(評価①)、サイトスケール(評価②)、処分場スケール(評価③)を目的に応じて空間的スケールを変えた階層的な地下水流動評価のアプローチをとることは日本においても有効。各評価結果の整合性を図ることが重要 各評価では、処分場の構成要素や亀裂等の地質媒体の適切なモデル化が検討され、処分場スケールの評価では、詳細なモデル化が必要
領域範囲	<ul style="list-style-type: none"> 陸側は分水嶺、海側は海水準変動による汀線の変動を考慮できる範囲を設定する必要(評価①) 地形変化による分水嶺の移動の可能性がある場合、それを考慮した領域範囲を設定する必要(評価①) 粒子追跡解析の流出点が将来にわたって含まれる範囲(評価②) 領域範囲は、①\geq②$>$③であり、各スケール間の境界条件は、境界条件位置での結果と整合させる必要。評価②と③における移行経路の連続性は確保される必要がある。
地形変化	<ul style="list-style-type: none"> 隆起・侵食等による地形変化は時間的・空間的に一様な変化ではなく、サイト特性に大きく依存し、その変化を反映した地下水流動の変化を把握する必要がある。SKBにおいては、時間的・空間的な表土厚さの変化が海・湖の侵食・堆積の特徴を反映したシミュレーションに基づき考慮されており、国内においても領域毎に特徴的な侵食・堆積のモデルを取り入れたシミュレーションにより地形変化を評価することは、地形変化による核種移行への変動幅を評価する上で有用であると考えられる。

*ある時間での地形情報に基づく定常解析による流動場の結果を複数用意し、非定常を模擬する方法(SKB)もある。定常解析における時間間隔の設定などの留意点に関して、核種移行パラメータを推定する定常/非定常な粒子追跡線解析から検討する必要がある

1.3.2.2 広域における地形変化・地下水流動・核種移行解析

中深度処分埋設地の位置の設計や天然バリアの性能評価の妥当性判断のため、山地・河川・平野・海域から構成されるわが国の典型的な集水域に対し、地形変化及び海水準変動に関する入力パラメータ及び拘束条件としての不確かさを考慮した将来の地形変化・地下水流動・核種移行の各評価を行い、その不確かさが各評価に与える影響に関する知見、評価の妥当性判断のための留意点を整備した。

(1) 3次元地形変化評価

わが国の典型的な集水域を対象に、過去から現在までの地形・地質のデータを活用し、過去から現在の地形変化を説明しつつ、将来への外挿における不確かさ(将来の海水準変動等)を考慮した地形変化を評価する方法論を整理した(図 1.3-7)。

整理した方法論に基づき、わが国の典型的な集水域を対象に不確かさを考慮した過去～現在～将来の地形変化評価を行った。現在～将来の地形変化評価では、地形変化評価の不確かさ(入力データ・拘束条件)及び将来の海水準変動の不確かさを考慮する必要がある。入力データについて、対象地域では古地形・沖積層分布に対し取得可能な情報が不十分なため、隆起速度・地質係数の不確かさを考慮した。拘束条件について、今年度はまず領域全体に影響を与える平均侵食速度に対して、不確かさを考慮した。これらの不確かさの要因ごとの影響を把握するために、基本ケース(ケース番号:A)に対して各1ケース(隆起速度:B, 地質係数:C, 平均侵食速度:D)を変動ケースとして考慮した。

将来のグローバルな海水準変動の不確かさは、図 1.3-8 に示す5ケースを考慮した。海水準変動は過去の外挿(ケース番号:1)を基本とし、単純化した場合(2)及び低海水準が持続した場合(5)の影響を評価した。また 1.3.2.1 の調査結果を踏まえ、将来数万年間氷期が継続した場合についても評価を行い、氷河性地殻均衡の数値シミュレーションに基づく評価結果

(RWMD)⁽⁹⁾・気温上昇に伴う海水準への影響 (IPCC)⁽¹⁰⁾・過去 90 万年間の最低海水準を踏まえた上で、海水準変動が大きい場合 (3)・小さい場合 (CO₂の影響大)⁽⁴⁾ を評価した。

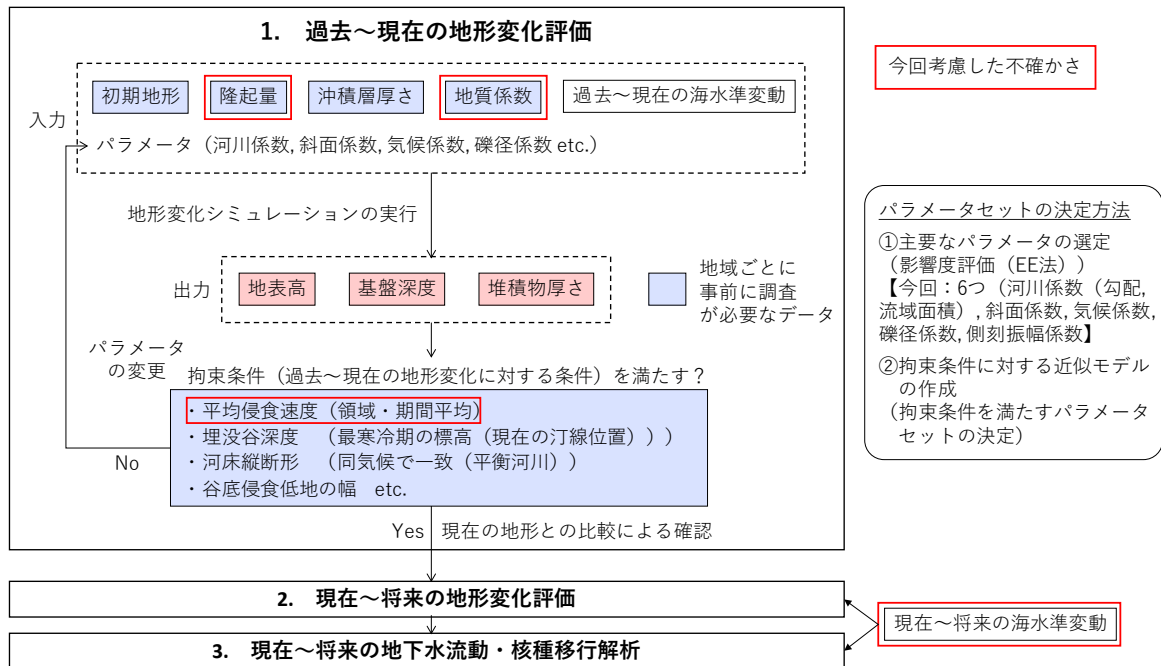


図 1.3-7 不確かさを考慮した現在～将来の地形変化・地下水流動・核種移行評価の流れ

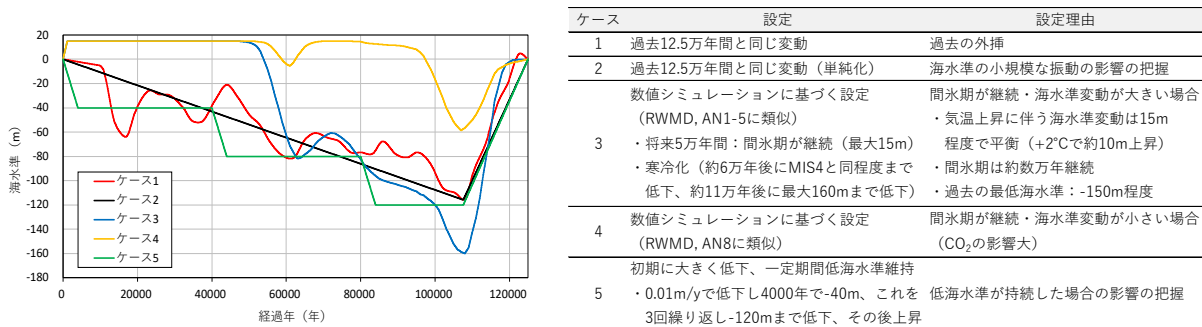


図 1.3-8 将来のグローバルな海水準変動に対するケース設定

現在 (0 年) 及び 12.5 万年後 (A-1 (過去と同じ海水準変動)・A-4 (海水準変動小 (CO₂排出の影響大)) における評価結果を図 1.3-9 に示す。また地質・領域毎に設定した 6 つの領域における地形勾配の違いを調べるため、海水準変動のケース 1～5 に対して比較した結果を図 1.3-10 に示す。将来の海水準変動の不確かさにより、海域から堆積層が発達している下流・中流域では、地形勾配の優位な変動性が確認された。解析結果の比較から、対象地域において入力パラメータ及び拘束条件の不確かさが将来の地形変化に与える影響を整理した (表 1.3-4、表 1.3-5)。

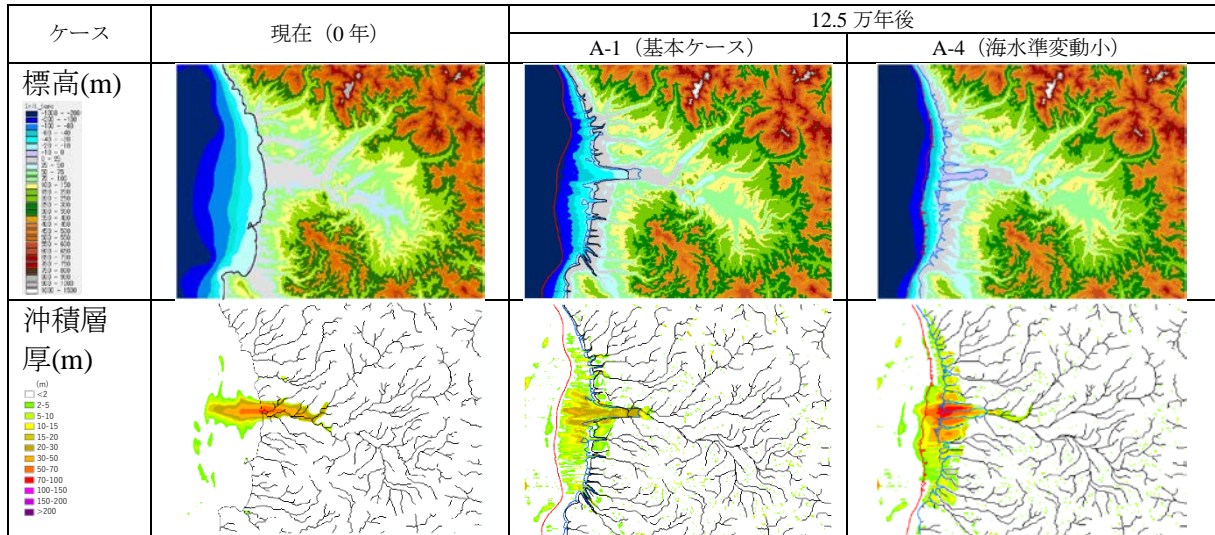


図 1.3-9 現在～将来の地形変化の評価結果（標高・沖積層厚さ・水系網）（A-1・A-4）
 （汀線の変動幅：赤線（10.8 万年後），青線（12 万年後））

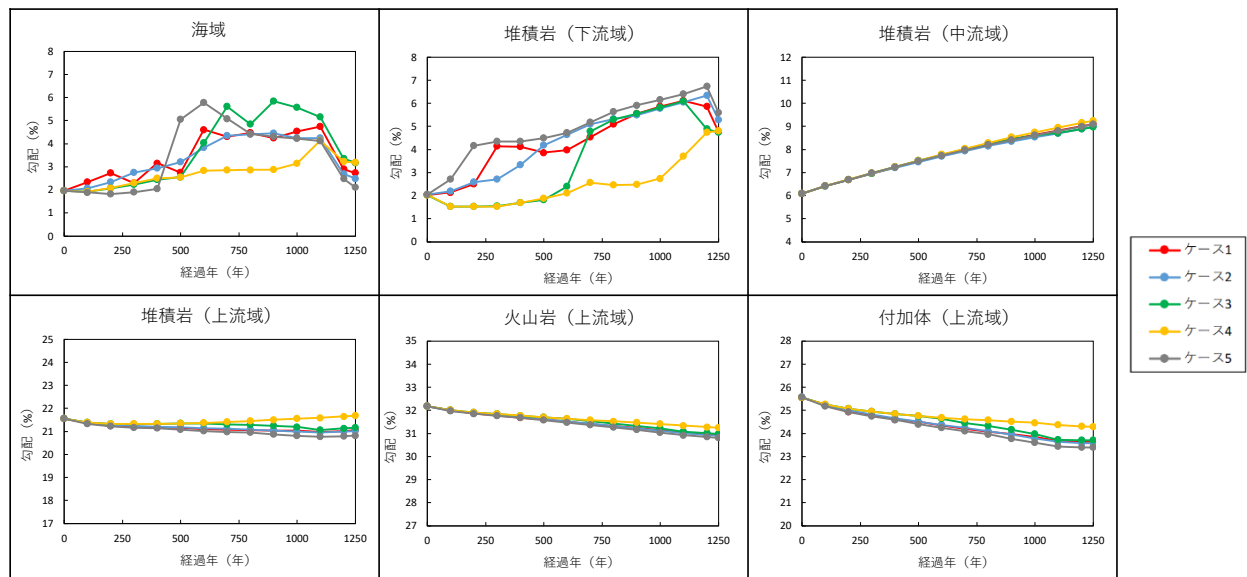


図 1.3-10 代表領域における地形勾配の経時変化（ケース A-1～5）

表 1.3-4 不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（領域別）

領域	不確かさによる影響（重要因子・影響の程度）
中・上流域	<ul style="list-style-type: none"> ・重要因子：地質係数・平均侵食速度・海水準変動の不確かさ（ケース4：気候変動（周氷河作用）への影響） ・影響の程度：上記の不確かさによる地形勾配への影響は、海域・下流域と比較して小さい（2～3%程度の変動）
海域・下流域	<ul style="list-style-type: none"> ・重要因子：海水準変動の不確かさ（地形勾配は各ケースの海水準変動に応じて変動） ・影響の程度：上記の不確かさによる地形勾配への影響は、中・上流域に比べて大きい（6%程度）

表 1.3-5 不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（要因別）

不確かさ		不確かさによる影響		比較したケース
		影響範囲 [理由]	影響の程度	
海水準変動	小規模な振動の有無	過去の海水準変動と同様の振動を考慮した場合と単純化した場合では、海域・下流域の地形勾配の経時変化に違いが現れる	振動の有無による標高・地形勾配の変化は最大で1%程度であり、その他の要因に比べて小さい	A-1 および A-2
	間氷期の継続	間氷期の継続期間には地形勾配はほぼ変化しないが、河川域・沿岸域の標高に違いが現れる [海水準が一定の場合、上流からの土砂が海域に堆積し続けるため]	河川域・沿岸域の標高は沖積層の堆積により、間氷期が継続しない場合に比べ、数十mの差が生じる	A-3, 4 および A-1, 2, 5
	海水準の低下の程度	海水準の低下の程度による違いは、海域・下流域で最も大きく現れる [海水準の低下に伴い河川の下刻による侵食が生じるため]	海水準の低下が小さい場合、海域・下流域の地形勾配は他ケースと最大約3%異なる	A-4 および A-1, 2, 3, 5
		海水準の低下の程度が大きく異なる場合、上流域でも影響が見られる [海水準変動は気候変動に伴う周氷河作用の大小に関連するため]	海水準の低下が小さい場合、上流域の地形勾配は他ケースと最大約1%異なる	
低海水準の持続	低海水準の持続による影響は、海域・下流域で現れる*	低海水準が持続しながら-120mまで低下する場合、海水準が-160mまで低下する場合と同程度の地形勾配の変動が見られる	A-5 および A-1, 2, 3, 4	
隆起速度	中流域で変化が見られる [海域：基本ケースと隆起速度の設定が同じため (0 mm/y)、上流域 (斜面域)：基本ケースと斜面係数 (斜面の侵食の大きさ) が同じため]	陸域 (一様隆起) の設定の違い (0.05 mm/y) に伴う地形勾配の違いは最大1%で、他の不確かさに比べて小さい	A-1 および B-1	
地質係数	中・上流域で変化が見られる	地質係数のコントラストを大きくした (100ずつ変化した場合、中・上流域における地形勾配の変化が大きくなる (最大約1%))	A-1 および C-1	
侵食速度	中・上流域で変化が見られる [基本ケースとの違いは斜面係数に現れ、これに伴う侵食量の違いは勾配が大きい領域ほど現れるため]	平均侵食速度の設定値を半分にした場合、中・上流域における地形勾配の変化が小さくなる (最大約1%)	A-1 および D-1	

* 海水準変動 ケース5で初期に見られる勾配の増加 (海域・下流域) は、海水準の急激な低下 (4000年で-40m) の影響も受けている

以上の結果から、対象地域に類似した山地・河川・平野・海域から構成される集水域を対象に、地形変化評価の妥当性判断における留意点を以下のように整理した。

- ・ 将来の地形変化を評価するためには、サイト固有の入力条件 (古地形、隆起速度、沖積層厚さ、地質係数) 及び過去～現在の地形変化に対する拘束条件 (平均侵食速度、埋没谷深度、河床縦断形、谷底侵食低地の範囲) を調査し、過去～現在に至る解釈・整合性を確認する必要がある。
- ・ サイト特有の拘束条件を満足し、現在の地形の再現性を示すことは、地形変化評価における不確かさの低減、さらに将来外挿への信頼性を向上させ、信頼のある地形変化の評価のためには、この評価プロセスは重要である。
- ・ 海水準が変動すると海域・下流域では侵食基準面の低下により河川の下刻が進むため、現在埋没谷が形成されている海域・下流域周辺では、海水準変動の不確かさに伴い地形勾配が優位に変動する。このエリア周辺が埋設地の候補の場合、埋設深度の減少及び将来の地形変化が地下水流動に与える影響を確認する必要がある。
- ・ 気候が変動し寒冷化が進むと、斜面域では周氷河作用 (凍結・融解に伴う侵食) の影響が大きくなるため、海水準変動の不確かさに伴う影響は上流域でも見られるが、不確かさに伴う中・上流域での地形勾配の変動幅は海域・下流域に比べて小さい。
- ・ このサイトにおいて想定した隆起速度、侵食速度、地質係数の不確かさが地形変化に与

える影響は、海水準変動の不確かさよりも小さい傾向がみられた。ただし、中流域より標高の高い内陸での地形変化では、これらパラメータの影響はより顕著にあらわれる傾向があるため、埋設地の位置に応じて影響を見極める必要がある。

また、将来の地形変化の不確かさケースの評価から、離隔距離の空間的・時間的な変動量や汀線位置の変動範囲を統計的に分析し、埋設地の位置の設計の妥当性判断のための1つの技術情報として提供可能であることを確認した（3章に記載）。

（2）地下水流動解析

（1）の現在～将来の地形変化評価に基づき、地形変化・海水準変動の不確かさを考慮した非定常な3次元地下水流動・塩分濃度解析を行った。現在（0年）及び12.5万年後（A-1（過去と同じ海水準変動）・A-4（海水準変動小（CO₂排出の影響大））における評価結果を図1.3-11に示す。初期状態において、陸域では標高差に応じた陸から海に向かう流れ、海域では密度差による潜り込む流れが生じ、流出点は汀線位置にほぼ一致する。海退時（10.8万年後）には海水圧の減少により海底面で湧出が生じている。A-4は間氷期が継続し海水準変動が小さいため、河口付近に厚く沖積層が分布する影響で、10.8万年後において河口付近の広範囲で流速がA-1より大きい。このような流れの変化は既往研究⁽¹¹⁾でも指摘されているが、今回の設定では沖積層に対し一様に高い透水性を想定している。海水準変動に伴う地下水流動の変化については、泥質の低透水性の堆積層の影響等を考慮した上で、実際の状況に則した検証を今後進める必要がある。

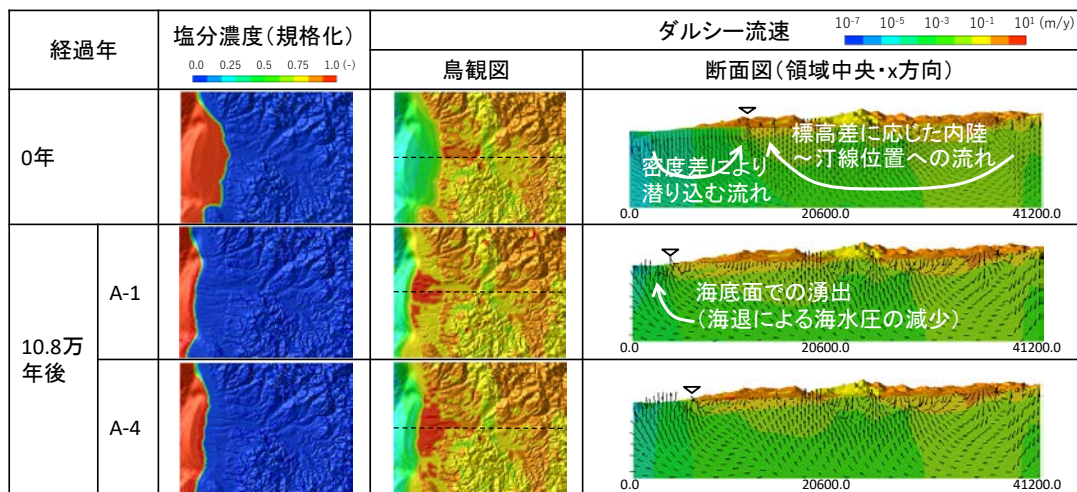


図 1.3-11 各時刻の流速・塩分濃度分布 (A-1・A-4)

沿岸域（海域・下流域、現河口から±4km）及び内陸部（中・上流域、地質毎）に設定した代表点における、埋設深度100mでのダルシー流速の経時変化を、図1.3-12及び図1.3-13に示す。これらの解析結果を踏まえ、対象地域における不確かさが将来の地形変化に与える影響を、領域・要因別に整理した（表1.3-6、表1.3-7）。沿岸域のうち、陸域では地形勾配と流速の変化に相関があり、地形勾配の増加が動水勾配を増加させ埋設深度における地下水流動を変化させていると考えられる。海域では海水準変動による汀線の移動と流速の変化に相関があり、地形勾配の変化に加え海退に伴う陸化・淡水化の影響が現れている。

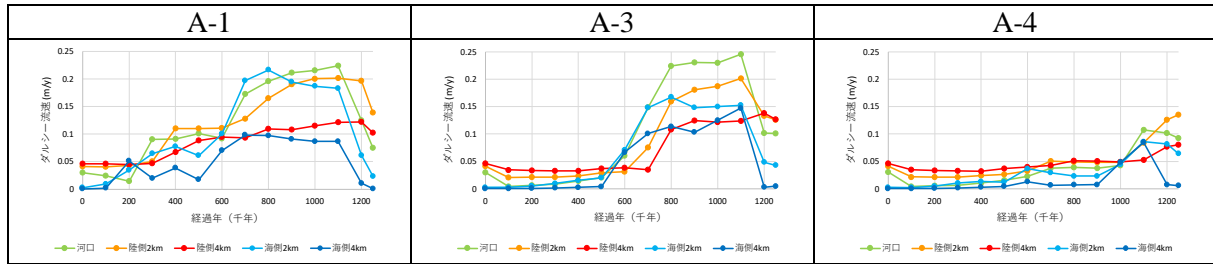


図 1.3-12 代表点におけるダルシー流速の経時変化（沿岸域）

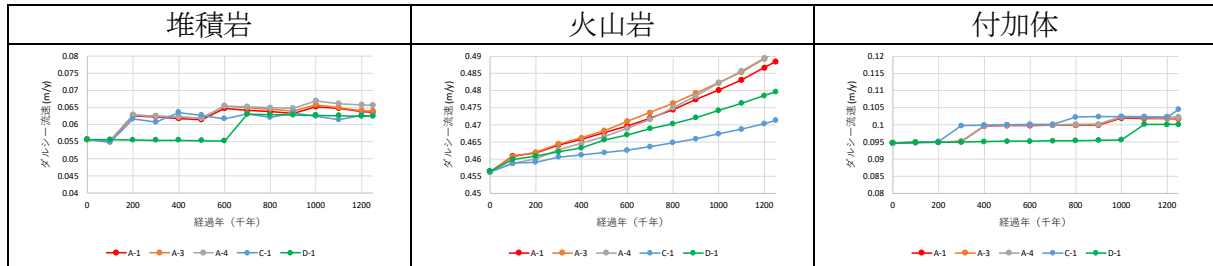


図 1.3-13 代表点におけるダルシー流速の経時変化（内陸部）

表 1.3-6 不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響（領域別）

領域	不確かさによる影響（重要因子・影響の程度）
内陸部	<ul style="list-style-type: none"> 重要因子：地質係数・平均侵食速度の不確かさ 影響の程度：上記の不確かさによるダルシー流速の変動幅は、現在（0年）の流速の1割以内
沿岸域	<ul style="list-style-type: none"> 重要因子：海水準変動の不確かさ（埋設深度のダルシー流速は地形勾配に応じて変動） 影響の程度：上記の不確かさによるダルシー流速の変動幅は、最大で現在（0年）から2桁増加（ケース3）

表 1.3-7 不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響（要因別）

不確かさ	不確かさによる埋設深度におけるダルシー流速への影響		比較したケース
	影響範囲	影響の程度	
海水準変動	間氷期の継続	間氷期の継続期間には、地形勾配と同様に流速もほぼ変化しない	A-1, 3, 4
	海水準の低下の程度	沿岸域で影響が見られ、海水準変動に伴う地形勾配と流速の変動傾向は類似している	
地質係数・侵食速度	内陸部で影響が見られる		A, C, D-1

*間氷期の継続に伴う沖積層厚の増加が核種移行へ与える影響については、別途評価が必要である

また、処分場の配置を行うに当たっては、将来にわたって地形変化・地下水流動による水理学的影響が小さい領域が望ましいと考えられる。水理学的な影響の小さい範囲を抽出するため、埋設深度 100m における流速・塩分濃度を、1 万年毎に各ケースに対し求めた。全ケースから推定した流速・塩分濃度の平均値及び標準偏差を図 1.3-14 に示す。その結果から、沿岸域、河川域及び勾配の大きな斜面域では、地形変化・海水準変動の不確かさによる変動（標準偏差）が大きいこと、処分場の埋設位置における地質分布と流速の絶対値との相関性があること、河川域及び勾配が大きな斜面域を除く領域では、流速の絶対値及び変動の両方が小さいことが示された。

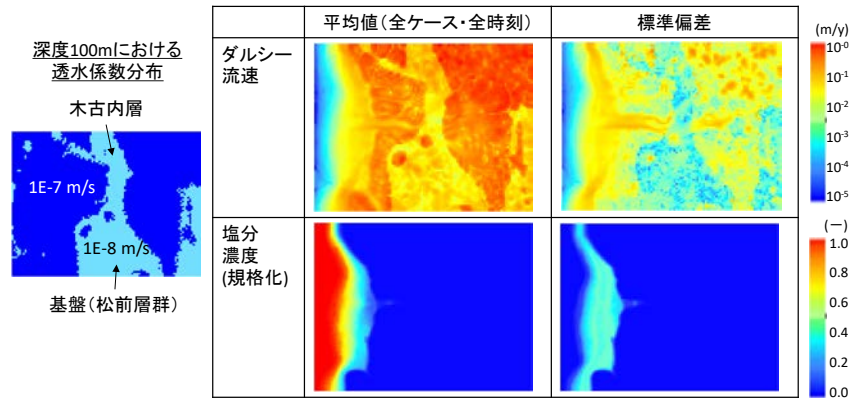


図 1.3-14 埋設深度 100m における流速・塩分濃度の平均値及び標準偏差

以上の結果から、対象地域に類似した山地・河川・平野・海域から構成される集水域を対象に、地下水流動評価の妥当性判断における留意点を以下のように整理した。

- 沿岸域では、海水準変動の不確かさが地形勾配及び 100m 程度の埋設深度における流速に大きく影響を与える。海域では海水準変動による汀線の移動に伴い流速が変動するが、陸域でも海水準変動による侵食基準面の移動に伴い地形勾配が変化する影響で流速が変化する領域が存在することがわかった。そのため、河口周辺の海域・下流域が廃棄物埋設地の候補である場合、将来の海水準変動の不確かさを考慮して地形変化が地下水流動に与える影響を確認する必要がある。
- 沿岸域では、埋設深度における流速の変化は海水準変動及び地形勾配の変化と連動する傾向にあり、また流速は海水準の低下の程度が大きいほど増加する傾向にあった。そのため、廃棄物埋設地が現在の汀線に近い場合、寒冷化が起こる時期や低下の程度を考慮し、早い段階で放出される核種に対し影響がないかを確認することは重要である。
- 内陸部（中・上流域）では、地形変化評価のパラメータ及び拘束条件の不確かさに伴う地下水流動の変動は海域・下流域に比べて小さい傾向にあった。上流域における気候変動の不確かさに伴う地形勾配の違い（周氷河作用）は、埋設深度の流速に対しては影響は小さかった。
- 流速と塩分濃度の絶対値とその変動性を指標にした解析結果の解釈から、埋設深度において将来長期にわたって水理学的影響の小さい領域を把握することは可能であり、流速の絶対値及び時間変動は透水性が低い地質の分布域のうち、河川域及び勾配が大きな斜面を除く領域で相対的に小さい傾向にあった。

(3) 核種移行解析

核種移行解析では、地形変化評価における地質係数の不確かさを考慮したケース（C-1）を対象に評価を実施した。図 1.3-14 に示した水理学的影響の小さい領域の中から、地質係数を変動させた場合の影響が生じると考えられる付加体が近傍にある堆積岩地点を選定し、深度 100m に埋設地を設定して、A-1（堆積岩類 300、火山岩類 400、付加体 500）と C-1（堆積岩類 200、火山岩類 400、付加体 600）のケースの核種移行を評価した結果を図 1.3-15（地表までの移行距離の時間変化及び天然バリアからのフラックス）に示す。

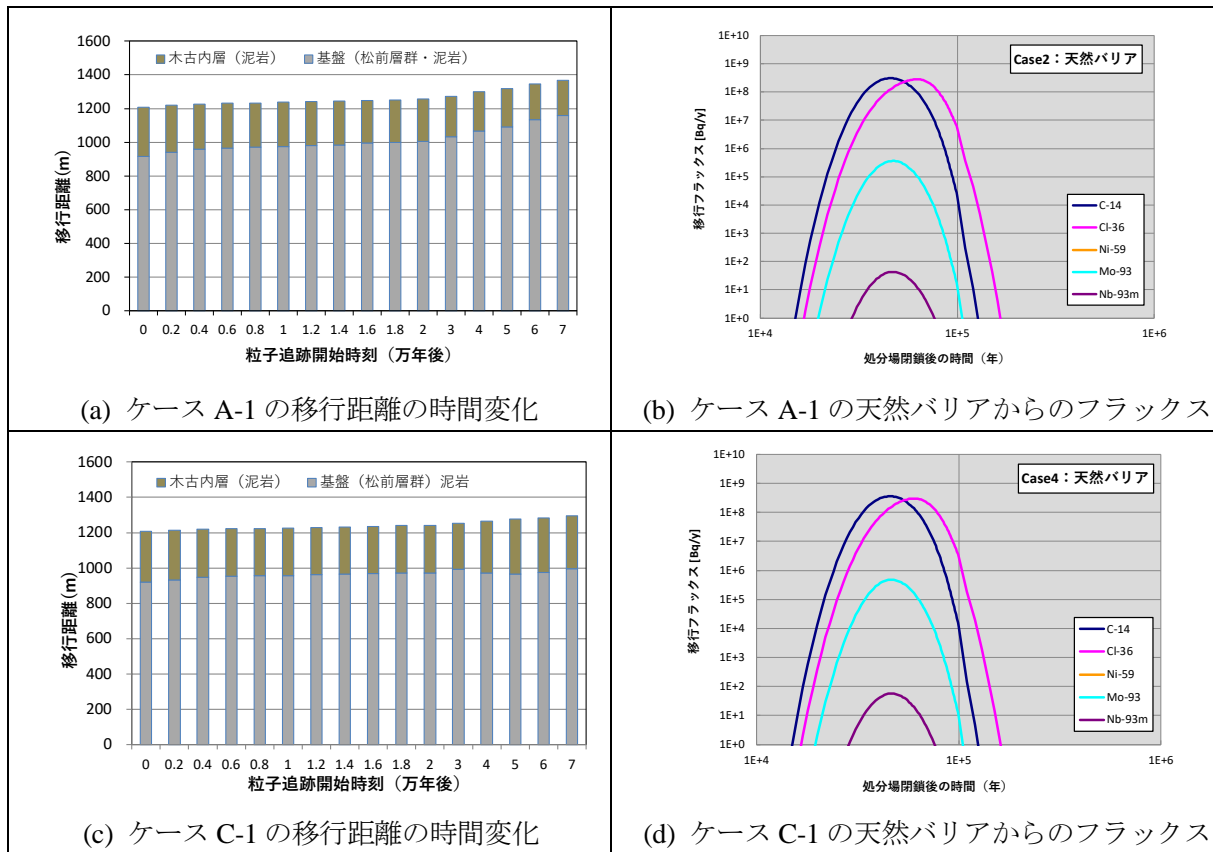


図 1.3-15 移行距離及び天然バリアからの核種移行フラックスの時間変化

- 核種移行経路は、地質係数の不確かさを考慮すると基本ケース A-1 よりも移行距離及び移行時間はそれぞれ 5%程度減少した。さらに経路上の地質区分を整理すると、基本ケースが基盤（松前層群）を通る区間が 200m 程度増加して、木古内層を通る区間が約 100m 程度減少するのに対し、地質係数の不確かさを考慮したケース C-1 では、基盤（松前層群）を通る区間は約 80m 程度しか増加せず、木古内層の通る区間は減少しなかった。これらの結果に基づいて、GSRW-PSA によって核種移行及び被ばく線量評価（河川水利用経路）を行ったところ、A-1 のピークフラックスに対し、C-1 のピーク線量は C-14 で 17%、Cl-36 で 6%、Mo-93 で 33%増加した。以上の結果から、地形変化による核種移行を評価した際の妥当性を評価するにあたっての留意点を以下に示す。異なる岩種（地質係数が異なる岩）が近傍に存在する場合、地質係数が変動すると将来の地形勾配が増加して、地下水流動が変化することによって、移行経路が時間経過とともに移動する。
- 経路上の地質区分の割合が変化して、核種移行への影響が大きくなると想定されるため、地質の受食性とその不確かさの検討が十分になされているかを確認するとともに、それが地下水流動場、特に移行経路の時間変化に与える影響と被ばく線量への影響を地質の調査データとともに適切に評価されているかを確認する必要がある。

1.3.2.3 ニアフィールド領域における地下水流動評価の検討

国内におけるニアフィールドの領域範囲に資するために、まず地下水流動解析における処分場スケールの領域範囲の設定方法を、異なるスケールの地下水流動の接続の観点から検討した。また、処分場スケールにおける EDZ の条件設定に対する感度解析により、核種移行経路に与える影響を地下水流動の観点から検討した。

ニアフィールドの考え方を次のように整理した。天然バリアの核種移行評価における領域設定は、大きくニアフィールドとファーフィールドに分類される。このときのニアフィールドは人工バリアを含むものではなく、天然バリアとして核種移行抑制機能を有する領域と考えた。ニアフィールド領域を信頼性のあるデータに基づいた地下水流動解析結果に基づき、天然バリアの性能が長期的、ここでは10万年程度、維持される見通しのある領域と定義した。この領域は(A)の解析を前提として、(B)、(C)の影響解析によってその領域を評価するものと考えた。(A) 坑道からの調査等で取得されるデータの密度、精度が考慮された条件に基づいた地下水流動解析 (B)、(C) であること
 (B) ニアフィールド領域を、処分場 (EDZを含む) 内の透水性に係るパラメータ変化がファーフィールド領域の圧力に影響を与えない範囲として設定 (SKBの考え方を参考)
 (C) さらに、地形変化・海水準変動を伴う非定常の地下水流動場の中で影響の小さい領域範囲が考慮される必要がある

次に、1.3.2.2と同じ対象地域において地形変化・海水準変動を考慮した広域・サイト・処分場スケールの地下水流動解析を2次元断面で予察的に実施した。

処分場スケールの領域範囲はSR-PSU⁽¹²⁾を参考に、処分場の水理特性の変化がサイトスケールの流れに影響が小さい範囲として評価した。坑道周辺が淡水の場合(11万年後)は坑道の透水性による影響は坑道周辺に限定されるが、塩分濃度の影響がある場合影響範囲は坑道の周囲約1km×600mに拡大した。移行経路への影響は処分坑道の上部100m程度で見られた(3章)。

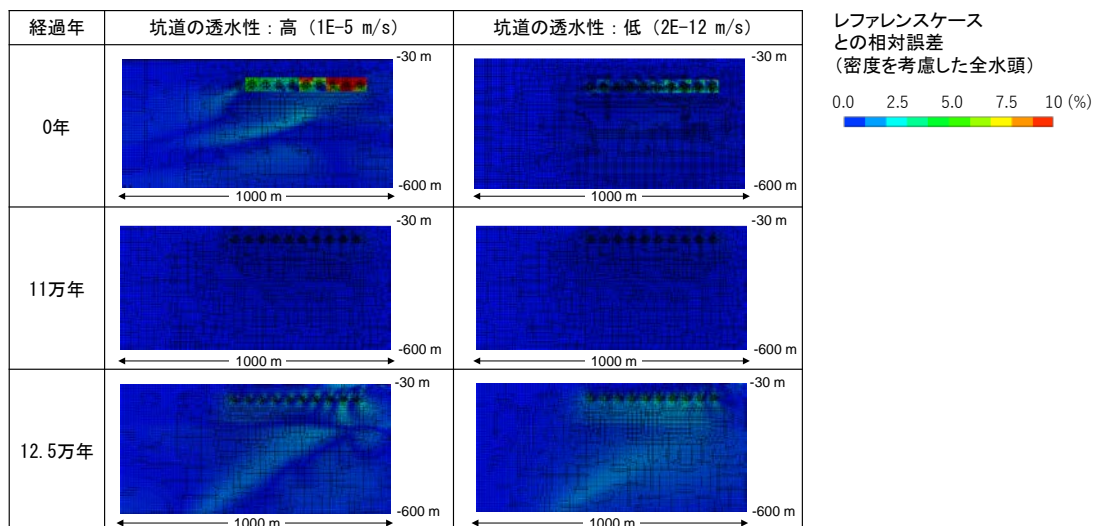


図 1.3-16 レファレンスケースとの相対誤差 (密度を考慮した全水頭)

また、処分場スケールにおけるEDZの厚さや透水係数の違いが移行距離及び移行時間を与える影響を、処分坑道が流れに直交する場合・平行な場合の2パターンに対して評価した。処分坑道が地下水流れに平行な場合、透水係数が20倍・EDZ厚さが1.5mのケースでは移行時間はEDZがない状態の4割程度まで減少し、平均流速は2倍程度増加した(3章に記載)。

以上の結果から、ニアフィールド領域の評価に係る留意点を以下のように整理した。

- ・ 処分場スケールの領域範囲設定にあたっては、坑道の透水性の影響は塩分によるため、海水準変動を含めた広域及びサイトスケールの地下水流動が地形変化を考慮して適切に評価されているかを確認する必要がある
- ・ 掘削による岩盤の物理的な影響により透水性が大きくなることにより、選択的にEDZ領域に通水される。EDZの透水性の上昇の程度及び幅を坑道内部からの調査により把握し、核種移行時間への影響が小さいことを適切に評価されているかを確認する必要がある。

核種移行時間を十分に確保できない場合に、EDZ による水みちを断つ方策が実現可能性を含めて確認する必要がある。

1.3.2.4 上北地域を対象とした評価に向けた調査

上北地域を対象に、長期的な地形変化・地下水流動・核種移行の各評価の入力として必要な水理地質構造等のデータ、評価結果の確認に適用できるデータの検討・収集を行った。また、海成段丘が広く分布し、波蝕及び海食崖の後退等の特徴的な侵食現象を有する上北地域を対象に、浅海域での波蝕・海食崖の後退のプロセスに関するモデル化の予察的検討を実施した。

上北地域を対象としたデータ調査では、地形変化、地下水流動、核種移行の各評価の入力・結果確認に適用できるデータの整理結果を示すとともに、データ情報が豊富と考えられる上北地域において公開文献等から今後の評価に向けて情報を取得した。取得した情報は、地質分布（地質係数）・地殻変動速度・平均侵食速度・地質断面図・水理定数（透水係数・間隙率・不飽和浸透特性）である（データの整理・調査結果は3章に記載）。

浅海域での波蝕・海食崖の後退に関する検討では、既往のモデル（浅海域の波浪による海底面の侵食・波浪による海食崖の後退）を用いて、上北地域に設定した2断面に対して、MIS10（36万年前）からのシミュレーションにより、現在の沖積基底の再現性を検討した。その結果、既往のモデルでは共通したパラメータで現在の沖積基底をおおよそ再現できたが、現在には見られない平坦面が低海水準期に形成された（図 1.3-17）。これに対し海水温と波のエネルギーの関係性を気候項として既往のモデルに取り入れた結果、現在の沖積基底を再現でき、3次元の地形変化評価において適用できる見込みが得られた（図 1.3-18）。

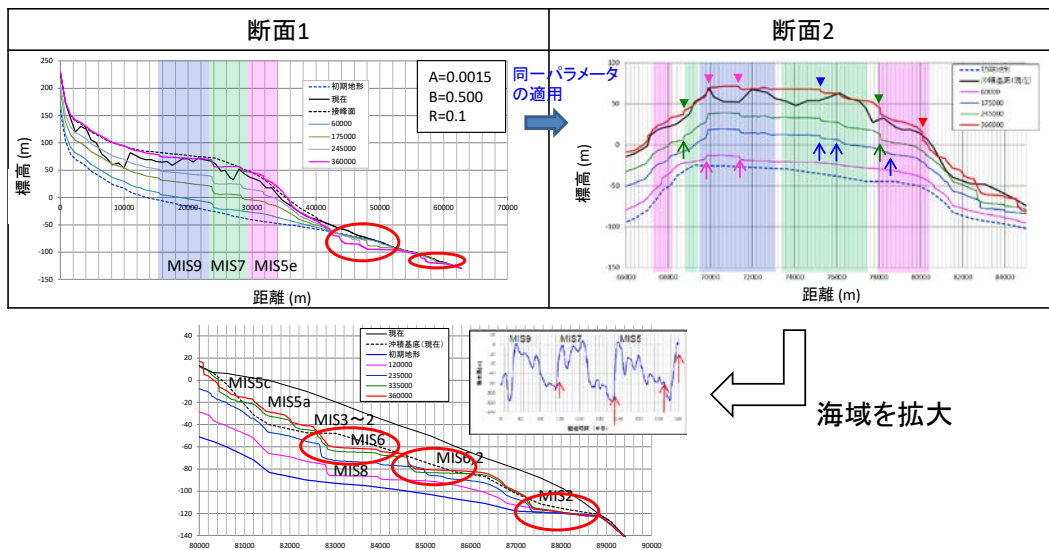


図 1.3-17 上北地域における2断面での評価結果（既往のモデル）

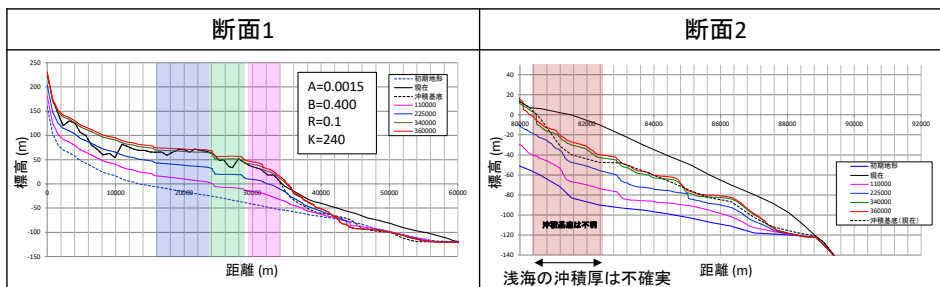


図 1.3-18 上北地域における2断面での評価結果（気候項を考慮）

1.3.3 人工バリアの性能確認及び地下水等確認に関するモニタリング評価の妥当性に係る科学的・技術的知見の取得

(1) 室内試験による知見の取得結果

ベントナイト材料の閉塞性（透水性）に係る知見の多くが、定容量の容器にベントナイトを充填して膨潤を拘束した条件によるものである。一方、孔の埋戻しではベントナイトの膨潤が必要なため非拘束条件となる。本事業では非拘束条件でのベントナイトによる閉塞の妥当性判断に係る知見の取得を目的として以下の室内試験を実施した（4.2 参照）。

(a) ベントナイトの膨潤途中で砂などの埋戻し材が施工された場合の閉塞の妥当性判断

ベントナイト、砂等の複数材料による埋戻し設計の閉塞について、ベントナイトの上位を埋め戻す砂等が閉塞性に与える影響を明らかにし、その妥当性判断に係る知見を取得するための試験を行った。小型アクリルセル内にブロック状に加圧成型したベントナイトを定置し、珪砂を投入しない場合、ベントナイトが膨潤してセルの側壁に密着した時点で珪砂を投入した場合、閉塞材が側壁と密着する前に珪砂を投入した場合のそれぞれについて閉塞性を確認した。その結果、非拘束条件で複数材料を利用する埋戻し計画の場合、ベントナイトが膨潤する前に砂を投入するとそれらが不均質に定置され、透水係数が約3～4桁上昇し閉塞性が担保できなくなることが確認された。これらは、施工上の品質管理に関わる問題であるが、孔空洞部が全て埋め戻されたあとで、閉鎖後の状況を直接確認するのは困難であることから、孔空洞部の閉鎖の妥当性（閉塞の見通し）を間接的に確認する上で、施工上の品質管理項目（材料投入時期など）の有無が重要な判断項目の一つと考えられた。

(b) ベントナイトブロックが不均質に配置された場合の閉塞の妥当性判断

複数のベントナイトブロックにより孔空洞部を埋め戻す場合、非拘束条件でのブロックの不均質膨潤や孔内での偏芯定置により閉塞が不均質となることが想定される。その閉塞性に与える影響を明らかにし、閉塞の妥当性判断に係る知見を取得するための試験を行った。複数のブロックを不均質に積み上げた試験、斜め孔にブロックを積み上げた試験を実施し、その透水性を確認した結果、いずれの場合においても低透水性となることが確認された。一方で、ブロック内に気相が残留し割れ目の形成が認められ、ブロック成型時の仕様や多数のブロックにより総気相量が増加する場合などでは、ベントナイト中の気相部が増しそれらが連結することで閉塞性が変化する可能性もある。本事業では、原位置の水圧条件下でのブロック中の気相について、実験的な知見は得られておらず、原位置水圧条件下において気相割れ目がベントナイトの閉塞の妥当性に与える影響について今後確認していく必要がある。

(c) 水質や水圧（流速）が変化したときの閉塞の妥当性判断

平成30年度事業の検討委員会において委員から、様々な水質条件下の拘束条件で得られている既存の知見を非拘束条件の孔空洞部の埋戻しに参照可能か、また、原位置の水圧条件下でのベントナイトの透水性について確認の必要性を指摘されており、それらを確認するために様々な水質・水圧条件下での室内試験を行った。海水相当のイオン強度の塩水、東濃地域の地下水の2つの条件下でベントナイト膨潤後に透水試験を行った結果、非拘束条件下の塩水条件下での透水係数は蒸留水条件と比較して1～2桁高くなり、既往の拘束条件と同様の傾向が確認された。このため、塩水条件下における孔空洞部の閉塞の妥当性確認においては、既往の拘束条件で得られた透水係数と有効粘土密度の関係に基づいて閉鎖設計がなされていけば問題ないと考

えられた。また、原位置の水圧条件での試験では、試験装置の耐圧性能を踏まえ 0.6 MPa の圧力条件において透水試験を実施した結果、透水係数と有効粘土密度の相関が (a) の大気圧下の試験結果と同様であったため、原位置水圧においても、ブロック膨潤後の有効粘土密度を推測することで、その透水係数が推測でき、閉塞の妥当性を確認できると考えられた。

(2) 原位置でのボーリング孔閉鎖確認試験による経路閉鎖設計に係る知見の取得

平成 30 年度に整理された閉鎖確認手順案及び室内試験での知見に基づき、原位置での閉塞確認手順 (案) を更新し、ボーリング孔空洞部の閉鎖設計を行った上で、その設計に従い瑞浪超深地層研究所の深度 300m 研究アクセス坑道に掘削されたボーリング孔の孔空洞部を閉塞し、閉鎖設計に係る妥当性判断指標に係る知見の取得を行った (4.3 参照)。

埋戻し材のレイアウト設計においては、ボーリング孔周囲の地質 (割れ目や透水性分布)、水圧、湧水状況 (透水性) などを把握するための事前調査を実施し、地質条件に応じた埋戻し材の配置を設計した (湧水割れ目区間がボーリング孔空洞部を介して連続しないよう、湧水区間に砂、その上の健岩部に閉塞材であるベントナイトを配置)。ベントナイトの仕様設計では、非拘束条件下での膨潤時に健岩部の透水係数と同等になる設計とした。閉鎖の妥当性確認については、平成 30 年度事業で得られた技術的知見に基づき、ベントナイトの定置前後に注水試験を行うことで孔空洞部が閉塞されたかどうかを判断する方法について妥当性を確認した。上記の設計により孔を埋戻し、閉塞確認試験を行った結果、閉塞部のベントナイトは岩盤と同等の低透水性を発揮していることが確認された。また、閉塞の判断指標として閉塞材定置前後にその透水性を注水試験により確認することで、閉塞の妥当性を確認できると考えられた。

(3) ボーリング孔 (主に空洞部) の閉鎖確認に係る確認項目・判断指標の抽出・整理

ボーリング孔全体を埋め戻した後に孔空洞部の閉塞性を直接的に確認することは困難であり、孔埋戻し前の計画の段階で、間接的に孔空洞部の閉塞の妥当性に関する確認を行うことや、孔埋戻し時に直接的に閉塞の妥当性を確認することが、閉塞の妥当性を確認する上で重要と考えられる。各段階の閉鎖の妥当性確認に係る確認項目・判断指標として、以下の点が挙げられる。

① 孔埋戻し計画における間接的な妥当性判断

- ✓ 孔内の水理地質学的状況に応じて埋戻し材のレイアウトが設計されているか
- ✓ 閉塞部の透水性は岩盤の透水性と同等以下になる設計か
- ✓ 閉塞材としてベントナイトを使用する場合は、その膨潤を想定して有効モンモリロナイト密度が設計されているか
- ✓ レイアウト設計・材料設計どおりの性能を発揮する閉塞手順か
- ✓ ベントナイトを使用する場合は、その膨潤挙動・速度を考慮した閉塞手順か

② 孔空洞部の埋戻しにおける直接的な妥当性判断

- ✓ 閉塞材の定置前後に水理試験を実施し、閉塞部が岩盤と同等の透水性以下になっていることを確認する。また、閉塞箇所の透水性と閉塞箇所深の地下水の動水勾配 (水圧) に応じて、閉塞箇所における地下水の移動速度 (漏えい速度) を判断できる。加えて、閉塞材定置時の深度及び膨潤後の頂部深度データから閉塞部の有効粘土密度を求め、閉塞性に関わる技術的根拠も確認できる。

なお、本事業で確認したレイアウト設計は、花崗岩のような割れ目媒体を対象とした考

え方であり、堆積岩など他の岩種の地質条件（透水性や水質等）に応じたレイアウト設計の妥当性に関する科学的・技術的知見の整理が必要である。また、本事業では、孔空洞の閉塞部の閉塞の妥当性判断について、原位置試験で 30m ほどの短い孔での知見しか得られていない。中深度処分を念頭において、100m 規模のボーリング孔閉鎖経験に基づく知見の蓄積などが課題として残されている。

1.3.4 廃棄物埋設に関する研究に必要な国内外の情報収集

平成 31 年 4 月に開催された MoDeRn2020、令和元年 8 月に開催されたバックエンド夏期セミナー及び令和元年 9 月に開催された日本原子力学会秋の大会に参加し、廃棄物埋設に関連する情報の収集を行った。収集した情報の詳細は第 5 章に記載した。

第1章の参考文献

- (1) 独立行政法人日本原子力研究開発機構, 平成21年度放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査報告書 (2010).
- (2) 小田治恵, 本田明, 高瀬博康, 小曾根健嗣, 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 (2013) pp. 34–49.
- (3) 公益財団法人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 (2018).
- (4) P. Cronstrand, Long-term performance of the bentonite barrier in the SFR silo, SKB Tech. Rep. TR-15-08 (2016) 46.
- (5) J. Lehtikoinen, Bentonite-Cement Interaction – Preliminary Results from Model Calculations, POSIVA Work. Rep. 2009-37 (2009).
- (6) N.C.M. Marty, C. Tournassat, A. Burnol, E. Giffaut, E.C. Gaucher, Influence of reaction kinetics and mesh refinement on the numerical modelling of concrete/clay interactions, J. Hydrol. 364 (2009) pp. 58–72.
- (7) M.H. Bradbury, U. Berner, E. Curti, W. Hummel, G. Kosakowski, T. Thoenen, The Long Term Geochemical Evolution of the Nearfield of the HLW Repository, NAGRA Tech. Rep. 12-01 (2014).
- (8) Myers R. J., Bernal S. A., Provis J. L., A thermodynamic model for C-(N-)A-S-H gel: CNASH ss. Derivation and validation, Cement and Concrete Research. 66 (2014) pp. 27-47.
- (9) Radioactive Waste Management, Geological Disposal Geosphere Status Report, NDA Report, DSSC/453/01 (2016).
- (10) IPCC, Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA (2013).
- (11) 登坂博行, 地質時間にわたる淡塩漸移帯の形成過程と形態変化に関する数値解析的検討 (その2) –動的境界条件下における検討–, 応用地質. 43(5) (2002) pp. 306–315.
- (12) Abarca, E., Idiart, A., de Vries, L. M., Silva, O., Molinero J, von Schenck H. Flow modelling on the repository scale for the safety assessment SR-PSU, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-13-08 (2013).

2. 人工バリアの性能評価に係る科学的・技術的知見の取得

2.1 はじめに

中深度処分を対象とした「炉内等廃棄物の埋設に係る規制の考え方について」（平成 28 年 8 月原子力規制委員会決定）（以下「規制の考え方」という。）では、リスク低減の観点から人工バリアの中でできるだけ多くの放射性核種を減衰させ、人工バリアから天然バリアへの漏出を抑えることによって、生活圏への放射性核種の移行を遅らせることが適当であることから、人工バリアには、放射性核種の漏出抑制機能を求めている。具体的には、少なくとも廃止措置の開始までの期間（300～400 年）は、人工バリアによって廃棄物埋設地からの放射性核種の漏出を抑制することを要求している。

また、規制の考え方では、人工バリアから漏出した放射性核種の地下水等を介した生活圏への移行については、天然バリアによって抑制することを要求しており、その際、人工バリアからの放射性核種の漏出について評価することを求めている。

現在検討されている中深度処分施設の概念（図 2.1-1）においては、「低拡散層」と呼ばれるセメント系的人工バリア、「低透水層」と呼ばれるベントナイト系人工バリアの使用が想定されている。

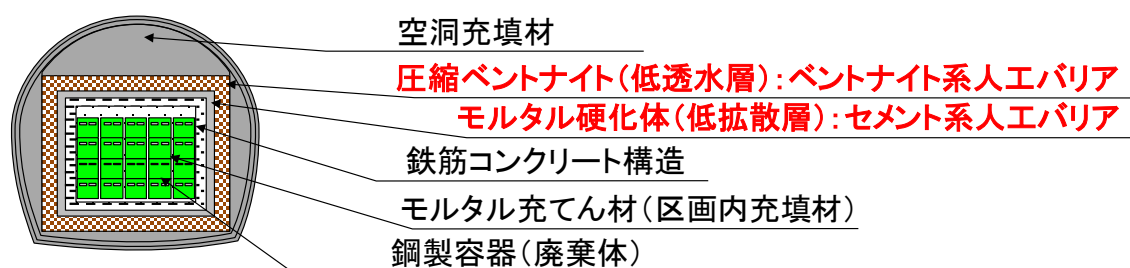


図 2.1-1 中深度処分における人工バリア等の概念図

このように、中深度処分においては、廃棄物埋設地からの放射性物質の漏えいを合理的に達成できる限り十分に低減する人工バリアの設置が見込まれているが、このためには、設置される人工バリアがその環境において技術的に施工可能なものであることに加え、設置された人工バリアが規制要求の期間又は性能評価が必要な期間において、廃棄物埋設地の外への主要な放射性核種の移行を抑制する性能を達成可能な材料を用いて設計されていることが重要である。しかし、従来の検討では、セメント系及びベントナイト系人工バリアに関する安全評価上の設定のための検討が重視され、セメント系及びベントナイト系それぞれの人工バリアの長期にわたる核種移行に関する性能評価については行われていない。こうした背景を踏まえ、人工バリアの核種移行に係る長期の性能評価や長期性能を確保する材料設計について妥当性を判断するために必要な科学的・技術的知見を蓄積する観点から、セメント系材料及びベントナイト系材料に係る検討を行った。

2.2 人工バリアの核種移行に係る長期の性能評価に関する科学的・技術的知見の取得

2.2.1 背景・目的

廃棄物埋設における人工バリアとしてセメント系及びベントナイト系人工バリアからなる多重バリアが想定されている。これらの人工バリアにおける長期間の核種移行を評価することが必要であることから、人工バリアにおける外部環境の変遷等における化学的変質等を考慮した

性能評価が必要である。セメント系人工バリアについては、核種移行に寄与する細孔構造を的確に把握することが求められる。特に、セメント系の場合、水和反応を伴う材料であることから①時間経過に伴い細孔構造の物理化学的変化があること及び②時間経過に伴う外部環境の変遷が細孔構造の物理化学的変化に影響を及ぼす可能性が高いことが想定されることから、長期間の時間経過による細孔構造の変化と核種移行への影響の評価が必要となる。そのためには、核種の漏えい抑止に係る規制要求に対し使用するセメント、混和材料、有機化学混和剤等のセメント構成材料による材料設計とそれを実現するための調合による細孔構造の評価と細孔構造を構成する CSH 水和物の安定性等を考慮した細孔構造の物理化学的変化を評価することが求められる。

平成 30 年度は、セメント系人工バリアの長期性能評価に向けて、「セメント硬化体の物質移行空間と細孔構造の形成」・「使用材料及び配合と細孔構造の関係」・「施工による影響」・「細孔構造や CSH ゲル構造の計測と評価」の 4 項目に関する既往文献調査と、物質移行に関する既往解析コードの調査を行った。その結果、既往の土木建築分野における研究では、100 年を悠に超える評価期間を扱っておらず、また既往の廃棄物処分分野における研究では、セメント系材料の特徴である水和反応過程を扱っていないことや溶脱を基本とした劣化評価のみであることが明らかとなり、課題として、時間経過に伴うセメント水和物・細孔構造の変遷の解明や、それらを踏まえた物質移行評価の整理が必要であることが指摘されている。

さらに試験研究として、平成 30 年度には「純粋セメント」を製造し、また混和材料として「フライアッシュ（能代発電所産）」を準備し、「プレーンセメントペースト硬化体」及び「フライアッシュ混合セメントペースト硬化体」を作製して、細孔構造や細孔壁を構成する主たるセメント水和物であるケイ酸カルシウム水和物（CSH ゲル）の構造の初期状態（ここで「初期状態」とは、一般的にセメントペースト硬化体の強度が概ね発現することが知られている材齢 1～3 か月程度の状態をいう。）について知見を取得した。

平成 31 年度は、平成 30 年度には使用しなかった新たな分析手法を加え、核種移行に係る性能評価において重要な細孔構造に着目し、その初期状態について CSH 安定性を考慮して確認した。分析する硬化体は、セメント協会が販売するセメントである「研究用セメント」と「フライアッシュ（能代発電所産）」を用いて「プレーンセメントペースト硬化体」及び「フライアッシュ混合セメントペースト硬化体」を作製して用意した。また平成 30 年度に作製した「プレーンセメントペースト硬化体」及び「フライアッシュ混合セメントペースト硬化体」の材齢 413 日の試料についても分析を実施した。細孔構造については、その計測方法の技術的課題や留意点、性能評価に活用するに当たっての視点を整理することを目的として、間接的手法（平成 30 年度も用いた水銀圧入法と水蒸気吸着法）及び直接的手法（平成 31 年度新たに追加した小角散乱法、AFM・TEM 観察）による分析を実施した。CSH 安定性考慮に当たっては、TMS 法及び NMR 法による分析を実施し、CSH 及び CASH ゲルの構造について評価した。

2.2.2 研究手法

セメント硬化体の細孔構造や CSH ゲルの構造評価を継続的に行っていくに当たり、使用する材料の選定が重要となる。近年のセメントは、①JIS において 5%までの少量混合成分（高炉スラグ、シリカ質混合材、フライアッシュ I 種又は I I 種、炭酸カルシウム含有率が 90%以上かつ酸化アルミニウム含有率 1.0%以下の品質の石灰石）の添加が認められていることにより品質ばらつきが多く、②原料として天然鉱石以外に一般産業廃棄物等のリサイクル材を用いていることにより微量金属元素等の不純物を含有しており、また③アルカリ骨材反応への対応により Na 及び K の含有量が 1960 年代のセメント（Na 及び K の合計を 1 wt%を目安とする）に比べて制限されている。その結果、セメント結晶生成時の化学平衡への影響や、水和物の不均一性・不安定性を引き起こす恐れが指摘されている。

平成 30 年度は、こういった問題を排除して長期性能評価を議論するため、純粋原材料のみを使用し、少量混合成分を含まないセメント（以下「純粋セメント」という。）を製造して硬化体作製に用いた。これにより①、②の問題を排除した議論が可能となったが、純粋原材料を使用した故に Na は 0.05wt%、K は定量下限以下と、③については課題として残った。平成 31 年度は、セメント協会が販売する研究用セメントを購入して用いた。研究用セメントは原料に混和材料としても用いられる高炉スラグやフライアッシュ等のリサイクル材を使用しているものの、少量混合成分は含まれておらず、混和材料を含まないプレーン材料である。また、Na を 0.31wt%、K を 0.40wt%含んでいる。これにより、①の問題は排除され、②は完全に排除できないものの一般産業廃棄物由来のリサイクル材に比べると不純物の懸念は少なく、③は目安の 1wt%には満たないが有意な量を含んでいる状態となった。純粋セメントを用いた場合のような議論はできないため、市販されているセメントを使用した場合の留意点を整理することとした。

以上のように選定した材料を用いてセメント硬化体の作製を行い、細孔構造及び CSH ゲルの構造の初期状態の確認を行った。硬化体はペースト、モルタル、コンクリートの 3 種類が存在するが、本事業では骨材の影響を排除するためにペーストを対象とした。配合は、セメント系人工バリアの基本性能として純粋セメント又は研究用セメントを用いて混和材料や化学混和剤を添加しない「プレーンセメント」と、純粋セメント又は研究用セメントに任意量のフライアッシュを添加した「フライアッシュ混合」の 2 種類とした。フライアッシュの添加量は、CSH ゲル生成量が同等となる「プレーンセメント」と「フライアッシュ混合」の硬化体の比較を行うことを鑑みて、スイス PSI (Paul Scherrer Institute)によって開発されている熱力学的相平衡計算ソフト GEM-Selektor (GEMS, version3, <http://gems.web.psi.ch/>, Kulik *et al.*, 2013⁽¹⁾; Wagner *et al.*, 2012⁽²⁾)によって決定した。

細孔構造の初期状態の確認は、間接的手法として水銀圧入法及び水蒸気吸着法を、直接法として小角散乱法及び TEM 観察を用いて行った。また CSH 安定性を考慮するために、トリメチル誘導体化法及び ²⁹Si-、²⁷Al-NMR 法を用いて CSH の構造評価を行った。

2.2.3 試験に用いた材料の特徴

(1) セメント

表 2.2-1 に今回使用したセメント材料を示す。

表 2.2-1 使用材料の仕様

材料	備考
純粋セメント (H30C)	平成 30 年度太平洋コンサルタント製造。高純度試薬を原料とする。Na 含有量 0.05 wt%、K 含有量 0.00 wt%。
研究用セメント (H31C)	平成 31 年度セメント協会から購入。原料に高炉スラグやフライアッシュ等のリサイクル材を使用しているものの、後添加は含まれていない。Na 含有量 0.31 wt%、K 含有量 0.41 wt%。

使用したセメントの性状を把握するために実施した評価項目を、表 2.2-2 に示す。

表 2.2-2 セメント評価項目一覧

材料	物理特性			力学特性		化学特性			
	密度	ブレン	粒度分布	圧縮強度 (28 日)	曲げ強さ (28 日)	化学組成	TG-DTA	鉍物組成	水和発熱
H30C	○※	○※	—	○※	—	○※	—	○※	○
H31C	○	○	○	○	○	○	○	○	○

※印は平成 30 年度実施、—は実施なし

圧縮強度、曲げ強さの供試体は W/C=0.45 で 28 日まで 20℃封緘養生し用意した。

①セメントの物理特性（密度、ブレン値、粒度分布）

密度及びブレン値の測定は JIS5201 に従って実施した。粒度分布はレーザー回折・散乱式の粒子径分布測定装置マイクロトラックを用い、高純度エタノールを分散媒として測定時間 30 秒の条件で行った。

表 2.2-3 に密度、ブレン値、粒径の一覧を示す。また図 2.2-1 に H31C の粒度分布を示す。粒度分布の測定から、H31C は最小粒径約 1 μm から最大粒径約 200 μm まで 2 オーダー幅の分布を示すことが確認された。

表 2.2-3 セメントの密度、ブレン値、粒度分布

試料	密度 (g/cm^3)	ブレン値 (cm^2/g)	粒度分布		
			最小粒径 (μm)	平均粒径※ (μm)	最大粒径 (μm)
H30C	3.15	3220	—	—	—
H31C	3.15	3280	1.01	21.3	200.6

※累積グラフにおいて体積割合が 50% となるときの粒径

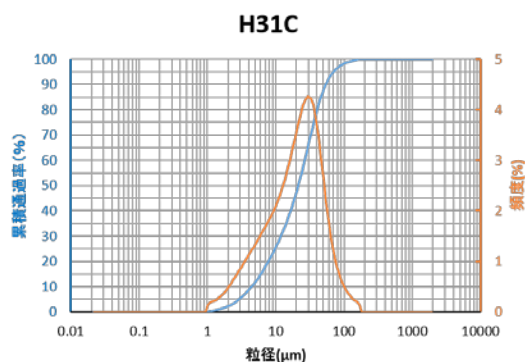


図 2.2-1 研究用セメント（H31C）の粒度分布

②セメントの力学特性（圧縮強度、曲げ強さ）

200kN 万能試験機を用いて圧縮強度の測定を行った。載荷速度は 0.15-1.0MPa/s で行った。圧縮強度は、試験にて得られた最大荷重を供試体の断面積で除したものとし有効数字 3 桁とした。

表 2.2-4 に圧縮強度、曲げ強さの一覧を示す。28 日時点での圧縮強度は、H31C が H30C に比べて 16%程高くなった。

表 2.2-4 セメントの圧縮強度、曲げ強さ

試料	圧縮強度(MPa)	曲げ強さ(MPa)
H30C	50.1	-
H31C	58.0	8.0

③セメントの化学特性（化学組成、TG-DTA、鉱物組成、水和発熱）

蛍光 X 線分析により、材料の化学組成の測定を行った。試料はガラスビード法によって作製した。定量は標準物質を用いた検量線法によって行った。またセメントの強熱減量について確認するため、熱重量示差熱分析(TG-DTA、日立ハイテクサイエンス社 STA7200)を用い、昇温速度 10°C/min で、室温より 1000°Cまで試料を加熱し、TG 曲線、DTA 変曲点を測定した。

表 2.2-5 に化学組成測定結果を示す。また図 2.2-2 に H31C の TG-DTA 曲線を示す。主要化学成分である CaO や SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃ は H30C と H31C で±1%以内で同じ化学組成となっている。また H30C は Na, K をほとんど含んでいないが、H31C は Na を 0.31%、K を 0.41%含有している。

表 2.2-5 使用したセメントの化学組成 (mass%)

	ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	P ₂ O ₅	MnO	Cl	SrO
H30C	1.09	21.83	5.44	3.41	64.77	0.73	2.46	0.05	0.00	0.12	0.04	0.02	0.001	0.031
H31C	0.99	21.64	4.69	3.27	65.15	1.08	2.00	0.31	0.41	0.22	0.15	0.11	0.004	ND

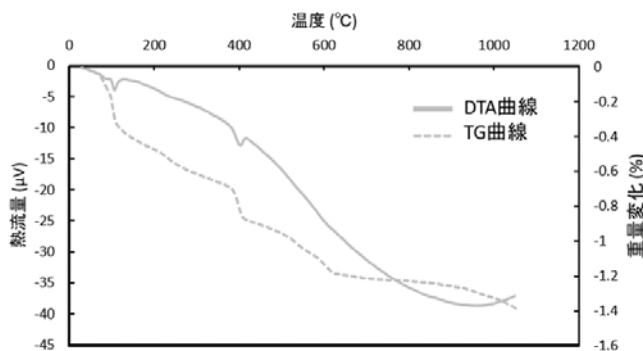


図 2.2-2 H31C の TG-DTA 曲線

化学組成は±1%の範囲内で一致したが、粉末 X 線回折とリートベルト解析を用いて鉱物組成を算定した。測定装置は粉末 X 線回折装置 D8 シリーズ (Bruker 社製)を用い、X 線源 Cu-K α 、管電圧 50kV、管電流 250mA、2 θ 走査範囲 5-65°、ステップ幅 0.02°、スキャン速度 2°/min の条件で X 線回折パターンの測定を行った。リートベルト解析には Bruker 社製 TOPAS を用いた。リートベルト解析に用いた結晶構造データを表 2.2-7 に示す。

表 2.2-6 にリートベルト解析の結果得られた鉱物組成を示す。H30C と H31C では明らかに鉱物組成に違いが見られており、H31C は H30C に比べ Ca₃SiO₅ (単斜晶)が多く、Ca₂SiO₄ (単斜晶)に乏しい組成となっている。

表 2.2-6 リートベルト解析に基づくセメントの鉱物組成

wt%	Ca ₃ SiO ₅ (単斜晶)	Ca ₂ SiO ₄ (単斜晶)	Ca ₃ Al ₂ O ₆ (立方晶)	Ca ₂ AlFeO ₆ (直方晶)	二水石膏	半水石膏	MgO
H30C	47.21	23.29	8.33	13.86	3.66	0	3.64
H31C	64.52	15.25	4.97	12.54	0.72	1.66	0.34

表 2.2-7 セメントのリートベルト解析に用いた結晶構造データ一覧

化合物名	結晶構造データ	文献
ケイ酸三カルシウム $\text{Ca}_{2.89}\text{Mg}_{0.11}\text{SiO}_5$	単斜晶 (Cm) $a=33.083(8)$ $b=7.027(2)$ $c=18.499(4)$ $\beta=94.12(2)$ $Z=36$	Nishi <i>et al.</i> (1985) ⁽³⁾
β -ケイ酸二カルシウム Ca_2SiO_4	単斜晶 ($P2_1/c$) $a=5.5121(1)$ $b=6.757(1)$ $c=9.3138(1)$ $\beta=94.581(1)$ $Z=4$	Mumme <i>et al.</i> (1995) ⁽⁴⁾
三カルシウムアルミネート $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$	立方晶 ($Pa-3$) $a=15.263(3)$ $Z=24$	Mondal and Jeffery (1975) ⁽⁵⁾
カルシウムアルミノフェライト $\text{Ca}_2\text{AlFeO}_6$	直方晶 ($Ibm2$) $a=5.584(5)$ $b=14.60(1)$ $c=5.374(5)$ $Z=4$	Colville and Geller (1971) ⁽⁶⁾
二水石膏 Gypsum $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	単斜晶 ($I2/a$) $a=5.679(5)$ $b=15.202(14)$ $c=6.522(6)$ $\beta=118.43(4)$ $Z=4$	Pedersen and Semmingsen (1982) ⁽⁷⁾
半水石膏 Bassanite $\text{CaSO}_4 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$	単斜晶 ($I2$) $a=12.01917(81)$ $b=6.93028(47)$ $c=12.66972(59)$ $\beta=90.2348(46)$ $Z=12$	Bezou <i>et al.</i> (1991) ⁽⁸⁾
酸化カルシウム Lime CaO	立方晶 ($Fm-3m$) $a=4.795(5)$	Natta and Passerini (1929) ⁽⁹⁾
酸化マグネシウム Periclase MgO	立方晶 ($Fm-3m$) $a=4.2110(12)$	Hazen (1976) ⁽¹⁰⁾

水和発熱特性を確認するために、コンダクションカロリメトリーを実施した。装置は、マルチマイクロカロリメーター（株東京理工製）を用い、W/C=0.45の配合で7日間発熱量の測定を行った。図 2.2-3 に発熱速度の経時変化を示す。表 2.2-8 に第1、2ピークの到達時間と発熱速度及び半日、1~7日時点における積算発熱量を示す。発熱速度の第1ピーク到達は、H30Cが反応開始2分ほどだったのに対し、H31Cは5分半ほどとやや遅くなっている。第1ピーク時の発熱速度はH30Cで110 J/hr・gだった一方、H31Cでは半分以下の44 J/hr・gとなっている。第2ピークはH30C、H31C共に水和開始約12時間後に訪れ、その時点の発熱速度はH30Cで8.2 J/hr・g、H31Cで9.5 J/hr・gと第2ピークの発熱速度はH31Cの方が大きくなっている。また、H30Cは第2ピーク到達後、およそ30時間後~80時間後にかけてゆるやかな発熱速度のピークが見られている。7日後の積算発熱量はH30Cで276 J/g、H31Cで268 J/gとH30Cでやや多くなっている。以上のように水和発熱特性には顕著な違いが出ており、鉱物組成の違いや比表面積の違いが影響していると考えられる。

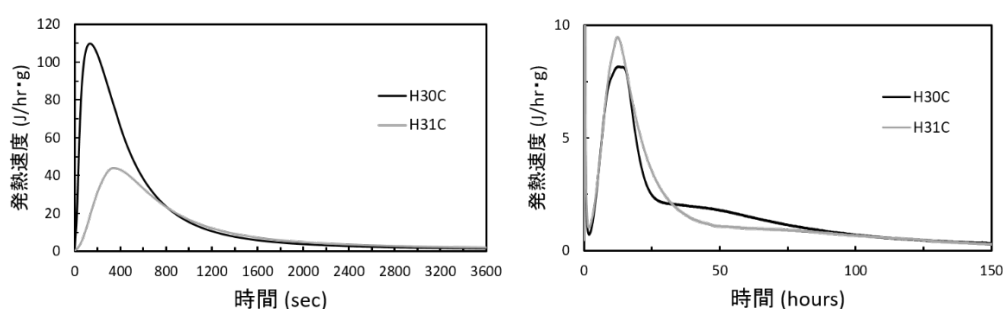


図 2.2-3 H30C、H31Cの水和発熱特性（左:1時間までの拡大図、右:150時間まで）

表 2.2-8 発熱特性のまとめ

		H30C	H31C
第1ピーク時間 (hr)		0.039	0.094
第1ピーク高さ (J/hr・g)		109.59	43.89
第2ピーク時間 (hr)		12.29	12.18
第2ピーク高さ (J/hr・g)		8.16	9.49
積算発熱量 (J/g)	0.5日	68.96	66.65
	1.0日	138.29	146.20
	2.0日	187.18	192.78
	3.0日	223.50	217.11
	4.0日	246.30	237.18
	5.0日	260.65	251.86
	6.0日	270.24	261.79
	7.0日	276.39	267.73

以上、硬化体材料としてのセメント評価のまとめとして、H30C及びH31Cについて、XRFに基づく化学組成は同等と見なせるものの、XRDによる鉱物組成やコンダクションカロリメトリーによる水和発熱特性は明らかに異なった。鉱物組成が大きく異なることから水和反応過程も異なるため、Na, K含有による水和反応への影響は見えない。Na, K含有量による水和反応への影響を議論するためには、同等の鉱物組成を持つセメントを比較対象として用意する必要がある。

(2) フライアッシュ

一般社会基盤分野では、資源の有効利用と環境負荷低減の観点から、混和材料の積極的な利用が望まれ、混和材料を使用しないコンクリートにはない優れた特性があることが知られている（土木学会 353 委員会報告⁽¹¹⁾）。混和材料の一種であるフライアッシュは、ポズラン反応を起こすことによりセメント水和反応で埋められなかった空隙を埋めてセメントペーストの緻密化を生じ、空隙表層部の CSH 相の表面電位の低下や鎖長の伸長など、核種移行性能に対してメリットをもたらすことが指摘されている（土木学会 353 委員会報告⁽¹²⁾）。そこでフライアッシュを混合したセメントについても検討した。フライアッシュは石炭火力発電所において副産され、その品質は、石炭原産地による違いや燃焼炉の性質により変化することが知られている（土木学会 353 委員会報告⁽¹³⁾）。ここでは、燃焼炉が小さく微粉砕石炭への火力が一定となって品質が比較的安定し、また燃焼温度が低いためにカルシウムを多く含みコンクリート用フライアッシュとして国内最良と言われる能代火力発電所産のフライアッシュを選定した。

表 2.2-9 に今回使用したフライアッシュを示す。

表 2.2-9 使用材料（フライアッシュ）の仕様

材料		備考
混和材料	フライアッシュ (H30FA)	平成 30 年度購入。東北電力能代火力発電所産。
	フライアッシュ (H31FA)	平成 31 年度購入。東北電力能代火力発電所産。

表 2.2-10 に使用したフライアッシュの性状を把握するために実施した評価項目を一覧にして示す。

表 2.2-10 フライアッシュ評価項目一覧

材料	密度	ブレン	粒度 分布	化学 組成	TG- DTA	鉍物 組成
H30FA	○※	○※	—	○※	○※	○※
H31FA	○	○	○	○	○	○

※印は H30 実施、—は実施なし

①フライアッシュの物理特性（密度、ブレン値、粒度分布）

密度及びブレン値の測定は JIS5201 に従って実施した。粒度分布はレーザー回折・散乱式の粒子径分布測定装置マイクロトラックを用い、高純度エタノールを分散媒として測定時間 30 秒の条件で行った。

表 2.2-11 に密度、ブレン値、粒径の一覧を示す。また図 2.2-4 に H31FA の粒度分布を示す。粒度分布の測定から、H31FA は最小粒径約 1 μm から最大粒径 184 μm まで 2 オーダー幅の分布を示すことが確認された。

表 2.2-11 フライアッシュの密度、ブレン値、粒度分布

試料	密度 (g/cm ³)	ブレン値 (cm ² /g)	粒度分布		
			最小粒径 (μm)	平均粒径※ (μm)	最大粒径 (μm)
H30FA	2.23	3950	—	—	—
H31FA	2.31	4180	1.30	11.6	184.0

※累積グラフにおいて体積割合が 50% となるときの粒径

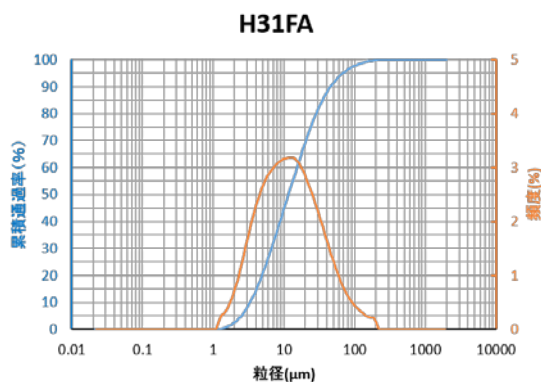


図 2.2-4 H31 購入のフライアッシュ (H31FA) の粒度分布

②フライアッシュの化学特性（化学組成、TG-DTA、鉱物組成）

蛍光 X 線分析により、材料の化学組成の測定を行った。試料はガラスビード法によって作製した。定量はファンダメンタルパラメータ法によって行った。またフライアッシュの強熱減量について確認するため、熱重量示差熱分析(TG-DTA、日立ハイテクサイエンス社 STA7200)を用い、昇温速度 10°C/min で、室温より 1000°Cまで試料を加熱し、TG 曲線、DTA 変曲点を測定した。

表 2.2-12 に化学組成測定結果を示す。また図 2.2-5 に H30FA、H31FA の TG-DTA 曲線を示す。H31FA の方が Ca に富む化学組成となっている。

表 2.2-12 使用したフライアッシュの化学組成 (mass%)

	ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	P ₂ O ₅	MnO	Cl	SrO
H30FA	2.53	60.53	24.68	4.45	2.74	1.15	0.41	0.69	1.19	1.13	0.30	0.05	ND	0.140
H31FA	1.66	56.39	26.45	3.71	5.34	1.34	0.40	1.21	1.22	1.31	0.61	0.06	ND	0.303

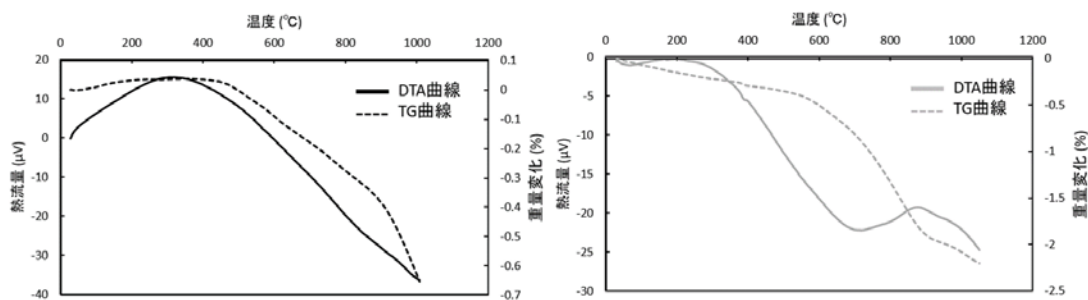


図 2.2-5 フライアッシュの TG-DTA 曲線（左: H30FA、右: H31FA）

フライアッシュ中の非晶質量を求めるため、測定装置は粉末 X 線回折装置 D8 シリーズ (Bruker 社製)を用い、X 線源 Cu-K α 、管電圧 50kV、管電流 250mA、2 θ 走査範囲 5-65°、ステップ幅 0.02°、スキャン速度 2°/min の条件で X 線回折パターンの測定を行った。リートベルト解析には Bruker 社製 TOPAS を用いた。非晶質を含むフライアッシュの測定の際は、内部標準物質として α -Al₂O₃ をあらかじめ 10 mass% 添加し、下記 2 つの式を用いて鉱物組成の定量を行った。

$$\text{結晶質鉱物量} = M_x \times \frac{R}{M_a} \times \frac{100}{(100 - R)}$$

$$\text{非晶質量} = \frac{100 \times (M_a - R)}{\left(M_a \times \frac{100}{(100 - R)}\right)}$$

M_x: リートベルト解析の試料中鉱物定量値、**M_a**: リートベルト解析の内部標準物質定量値、**R**: 内部標準物質の混合割合 (=10 mass%)

表 2.2-13 フライアッシュのリートベルト解析に用いた結晶構造データ一覧

化合物名	結晶構造データ	文献
α -石英 SiO ₂	三方晶 (<i>P3₂21</i>) $a=4.91239(4)$ $c=5.40385(7)$ $Z=3$	Will <i>et al.</i> (1988) ⁽¹⁴⁾
ムライト 3(Al ₂ O ₃) · 2(SiO ₂)	直方晶 (<i>Pbam</i>) $a=7.552$ $b=7.6872$ $c=2.8843$	Angel and Prewit (1986) ⁽¹⁵⁾
マグネタイト Fe ₃ O ₄	立方晶 (<i>Fd-3m</i>) $a=8.501(3)$	Montoro (1938) ⁽¹⁶⁾
α -酸化アルミニウム Al ₂ O ₃	三方晶 (<i>R-3c</i>) $a=4.7606(5)$ $c=12.994(1)$	Tsirelson <i>et al.</i> (1985) ⁽¹⁷⁾

上記の方法により測定したフライアッシュの鉱物組成を表 2.2-14 に示す。H31FA の方が非晶質に富む鉱物組成となっている。

表 2.2-14 フライアッシュの鉱物組成

wt%	非晶質	α -石英	ムライト	マグネタイト
H30FA	68.02	14.14	16.75	1.08
H31FA	76.04	9.68	13.59	0.69

以上、硬化体材料としてのフライアッシュ評価のまとめとして、H30FA 及び H31FA について、同じ能代火力発電所産ではあるものの、鉱物組成には明らかな違いが認められた。

2.2.4 試験

(1) 配合条件

配合は、スイス PSI (Paul Scherrer Institute)によって開発されている熱力学的相平衡計算ソフト GEM-Selektor (GEMS, version3, <http://gems.web.psi.ch/>, Kulik *et al.*, 2013⁽¹⁾; Wagner *et al.*, 2012⁽²⁾)を用いて、反応が完了した状態の CSH 量の評価結果を検討して決定した。データベースは Cemdata 18 を用いた。なお CSH の熱力学データは、Lothenbach *et al.* (2019)⁽¹⁸⁾の”CSHQ モデル”(CSH 端成分として K-S-H, Na-S-H を加えた 6 成分からなる)を用いている。解析の初期値は、XRF による化学組成測定結果から各材料の元素組成を算出して用いた (表 2.2-15)。

表 2.2-15 GEMS 計算の初期化学組成

入力化学組成 (mol/100g)	H30C	H30FA	H31C	H31FA
Si	0.359	1.051	0.365	0.977
Al	0.106	0.505	0.093	0.540
Fe	0.042	0.058	0.041	0.048
Ca	1.146	0.051	1.176	0.099
Mg	0.075	0.030	0.033	0.035
S	0.029	0.005	0.005	0.005
Na	0.002	0.023	0.038	0.041
K	0	0.027	0.025	0.027
O	2.249	3.069	2.186	3.020

単位水量は、20°C封緘養生環境下で 100%水和出来、材料分離が生じない均質なものとなることを考慮し、決定した。表 2.2-16 に単位水量をパラメータとして、純粋セメント (H30C) を使用したプレーンセメントペースト (H30 プレーンセメントペースト硬化体) の相組成を GEMS で計算した結果を示す。この結果から、水量 40 g 以上で計算上はセメントの水和に必要な H₂O が存在することとなる。

表 2.2-16 H30 プレーンセメントペースト硬化体の GEMS 計算結果 (単位水量変数)

単位セメント量(g)	100	100	100	100	100	100
単位水量(g)	30	35	40	45	50	55
水和生成物量(vol%)						
W	0	0	3.85	10.77	16.76	22.00
Straetlingite(結晶質CASH)	0	0	0	0	0	0
CSH(非晶質)	47.08	58.31	50.58	46.94	43.79	41.04
Ettringite	0	0	0	0	0	0
Monosulfate	0.00	0.00	16.09	14.93	13.93	13.05
C3AH6	0	0	0	0	0	0
CH	30.33	30.39	21.73	20.17	18.81	17.62
Goethite	1.49	1.36	1.36	1.27	1.18	1.11
Hydrotalcite	9.14	8.32	6.38	5.92	5.53	5.18
合計	88.04	98.38	100	100	100	100
未水和セメント量(vol%)						
Alite	0	0	0	0	0	0
Belite	11.96	1.62	0	0	0	0
Aluminate	0	0	0	0	0	0
Ferrite	0	0	0	0	0	0
合計	11.96	1.62	0	0	0	0

W: H₂O、Straetlingite: 結晶質CaO-Al₂O₃-SiO₂水和物、CSH: 非晶質CaO-SiO₂水和物、
Ettringite: 3CaO·Al₂O₃·3CaSO₄·32H₂O、Monosulfate: 3CaO·Al₂O₃·CaSO₄·12H₂O、
C3AH6: ハイドロガーネット3CaO·Al₂O₃·6H₂O、CH: ポルトランダイトCa(OH)₂、
Goethite: FeO(OH)、Hydrotalcite: Mg₆Al₂(CO₃)(OH)₁₆·4H₂O

単位水量 45 g の H30 プレーンセメントペーストの CSH 量を基準として、GEMS 計算上で CSH 量が同等となる研究用セメントがベースのプレーンセメントペースト (H31 プレーンセメントペースト硬化体) を計算した結果、表 2.2-17 から単位水量を 46.03 g に決定した。

表 2.2-17 H31 プレーンセメントの GEMS 計算結果 (単位水量変数)

単位セメント量(g)	100	100	100	100
単位水量(g)	40	45	46.03	50
水和生成物量(vol%)				
W	5.13	11.98	13.08	17.90
Straetlingite(結晶質CASH)	0	0	0	0
CSH(非晶質)	51.22	47.54	46.94	44.36
Ettringite	0	0	0	0
Monosulfate	16.22	15.05	15.27	14.05
C3AH6	1.18	1.10	0.85	1.02
CH	22.58	20.93	20.52	19.50
Goethite	1.34	1.24	1.23	1.16
Hydrotalcite	2.32	2.16	2.12	2.01
合計	100	100	100	100
未水和セメント量(vol%)				
Alite	0	0	0	0
Belite	0	0	0	0
Aluminate	0	0	0	0
Ferrite	0	0	0	0
合計	0	0	0	0

フライアッシュ混合セメントペーストにおいては、単位セメント量を一定とし、FA 量と水量をパラメータとして配合を検討した。なお、化学平衡時での CSH 量を基準とするため、フライアッシュは計算上全量反応とした。純粋セメントをベースにフライアッシュを混合したセメントペースト配合 (以下「H30FA 混合セメントペースト硬化体」という。) について、単位セメント量を 100、単位 FA 量を 25 (セメント:FA=8:2) として単位水量を変化させた GEMS 計算結果を表 2.2-18 に示す。FA を添加することで水和に必要な水が増加し、GEMS 計算上生成される CSH 量も増加する。H30 プレーンセメントペースト硬化体の CSH 量と合わせるためには水量を増加させる必要があるが、GEMS 計算上で CSH 量が同等となるまで水量を増やすと、フライアッシュ混合セメントペースト配合の化学組成においては水和に使われなかった余剰水が増加し、材料分離を起こす配合となってしまふ。FA 量を増やして系全体としての化学組成を変えていくと Stratlingite (結晶質 $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 水和物) が生成することで水和に使用される水量が増加し、H30 プレーンセメントペースト配合に比べて余剰水を過剰に増やさずとも CSH 量を合わせられるようになる (表 2.2-19)。一方で、FA 量を増やしていくと、GEMS 上で Natrolite と呼ばれる Na-ゼオライトの一種が出現する領域に入り、化学反応系が変わる (表 2.2-20) ことから、Natrolite が出現しない領域に FA 添加量をとどめることとして FA 量を 43 (g) とした。

表 2.2-18 H30FA 混合の GEMS 計算結果 (FA=25 g、単位水量変数)

単位セメント量(g)	100	100	100	100
単位FA量(g)	25	25	25	25
単位水量(g)	50	55	60	65
水和生成物量(vol%)				
W	0.57	6.41	11.60	16.25
Straetlingite(結晶質CASH)	15.16	14.28	13.49	12.79
CSH(非晶質)	62.51	58.83	55.57	52.64
Ettringite	0	0	0	0
Monosulfate	14.61	13.74	12.97	12.28
C3AH6	0	0	0	0
CH	0	0	0	0
Goethite	1.47	1.39	1.31	1.24
Hydrotalcite	5.69	5.35	5.06	4.79
合計	100	100	100	100
CSH固溶体端成分				
CSHQ-JenD	27.29	25.67	24.23	22.95
CSHQ-JenH	19.80	18.66	17.64	16.73
CSHQ-TobD	14.19	13.36	12.63	11.97
CSHQ-TobH	0.79	0.75	0.71	0.67
KSiOH	0.22	0.20	0.18	0.16
NaSiOH	0.21	0.19	0.18	0.16
CSH計	62.51	58.83	55.57	52.64

表 2.2-19 H30FA 混合の GEMS 計算結果 (FA=43 g、単位水量変数)

単位セメント量(g)	100	100	100	100
単位FA量(g)	43	43	43	43
単位水量(g)	60	65	70	65
水和生成物量(vol%)				
W	2.38	7.32	11.78	15.83
Straetlingite(結晶質CASH)	29.55	28.05	26.71	25.48
CSH(非晶質)	53.67	50.96	48.50	46.27
Ettringite	7.77	7.37	7.02	6.70
Monosulfate	0	0	0	0
C3AH6	0	0	0	0
CH	0	0	0	0
Goethite	1.48	1.41	1.34	1.28
Hydrotalcite	5.15	4.89	4.65	4.44
合計	100	100	100	100
CSH固溶体端成分				
CSHQ-JenD	5.66	5.37	5.10	4.86
CSHQ-JenH	23.38	22.20	21.13	20.17
CSHQ-TobD	18.26	17.34	16.50	15.74
CSHQ-TobH	5.79	5.51	5.25	5.02
KSiOH	0.31	0.29	0.27	0.26
NaSiOH	0.27	0.25	0.24	0.22
CSH計	53.67	50.96	48.50	46.27

表 2.2-20 H30FA 混合の GEMS 計算結果 (FA=54 g、単位水量変数)

単位セメント量(g)	100	100	100
単位FA量(g)	54	54	54
単位水量(g)	65	70	75
水和生成物量(vol%)			
W	3.55	8.06	12.16
Straetlingite(結晶質CASH)	31.79	30.31	28.96
CSH(非晶質)	50.13	47.79	45.66
Ettringite	7.36	7.01	6.69
Monosulfate	0	0	0
C3AH6	0	0	0
CH	0	0	0
Goethite	1.48	1.41	1.35
Hydrotalcite	4.89	4.66	4.46
Natrolite	0.79	0.76	0.72
合計	100	100	100
CSH固溶体端成分			
CSHQ-JenD	1.41	1.34	1.28
CSHQ-JenH	16.97	16.18	15.46
CSHQ-TobD	16.26	15.50	14.81
CSHQ-TobH	15.04	14.35	13.71
KSiOH	0.36	0.34	0.32
NaSiOH	0.09	0.08	0.08
CSH計	50.13	47.79	45.66

Natrolite: $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

FA 量を 43 g で固定し、水量をパラメータとして CSH 量を合わせた結果を表 2.2-21、表 2.2-22 に示す。H30FA 混合では水量が 73 g、H31FA 混合では 74.7 g とした。

表 2.2-21 H30FA 混合で FA 量 43 g、水量 73 g とした GEMS 計算結果

単位セメント量(g)	100
単位FA量(g)	43
単位水量(g)	73
水和生成物量(vol%)	
W	14.26
Straetlingite(結晶質CASH)	25.96
CSH(非晶質)	47.14
Ettringite	6.82
Monosulfate	0
C3AH6	0
CH	0
Goethite	1.30
Hydrotalcite	4.52
合計	100
CSH固溶体端成分	
CSHQ-JenD	4.96
CSHQ-JenH	20.54
CSHQ-TobD	16.04
CSHQ-TobH	5.11
KSiOH	0.26
NaSiOH	0.23
CSH計	47.14

表 2.2-22 H30FA 混合で FA 量 43g、水量 74.7 g とした GEMS 計算結果

単位セメント量(g)	100
単位FA量(g)	43
単位水量(g)	74.7
水和生成物量(vol%)	
W	15.63
Straetlingite(結晶質CASH)	28.19
CSH(非晶質)	46.94
Ettringite	5.95
Monosulfate	0
C3AH6	0
CH	0
Goethite	1.19
Hydrotalcite	2.11
合計	100
CSH固溶体端成分	
CSHQ-JenD	11.12
CSHQ-JenH	19.03
CSHQ-TobD	14.03
CSHQ-TobH	1.84
KSiOH	0.43
NaSiOH	0.49
CSH計	46.94

以上から、今年度分析に供する供試体の配合を表 2.2-23 にまとめる。

表 2.2-23 分析に供した供試体の配合

	W	C	FA
H30 プレーンセメント ペースト硬化体	45	100	0
H30FA 混合セメント ペースト硬化体	73	100	43
H31 プレーンセメント ペースト硬化体	46	100	0
H31FA 混合セメント ペースト硬化体	75	100	43

ペーストの練り混ぜは、3L機械練り用練混ぜ機(JIS R 5201-1997)を用い、以下のような手順で行った。なお、練り混ぜ水は H30 プレーンセメントペースト硬化体及び H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体は蒸留水を、H31 プレーンセメントペースト硬化体及び H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体はイオン交換水を用いた。

- ①セメントと混和材を混合したものを練り鉢に入れ空練りを 30 秒間行う。
- ②注水してから 60 秒間、低速で練混ぜる。
- ③さじで練り鉢及びパドルに付着したペーストを練り鉢の中心部に集めるようにしてかき落とす。
- ④低速から高速に切り替え 90 秒間練混ぜる。
- ⑤材料が分離しないよう素早くポリ瓶へ詰める。

練混ぜたペーストを 250ml のポリエチレン瓶に移し、20°C室内で所定材齢まで保管した。このときセメントペーストが硬化するまでの間、材料分離を生じさせないためにローテーターで回転させた。すべての試料について、外部と水の出入りがない状態を保つためにポリエチレン瓶内に封緘し、20°C一定の室内に保管して反応開始から 28 日、91 日、413 日経過時に水和停止し、分析を実施した。

(2) 相組成分析

各材齢における水和進行度を定量的に評価するため、①粉末 X 線回折測定とリートベルト解析によるセメント鉱物及びセメント水和鉱物の定量分析、②TG-DTA による水酸化カルシウム量の定量分析及び強熱減量測定、③選択溶解法による未反応 FA 量の定量を行い、以上の結果に基づいて④相組成及び Ca_3SiO_5 (単斜晶) 反応率・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率・FA 反応率・CSH 生成量の経時変化を示し、プレーンセメント、FA 混合による水和反応の違いについてまとめた。

①粉末 X 線回折測定とリートベルト解析

粉末 X 線回折測定及び選択溶解には、水和停止を行ったセメントペースト粉末を試料として準備した。所定の材齢において、ハンマーを用いて 1.2 mm 以下まで粗砕した後、遊星ボールミルで 7 分間微粉碎した。微粉碎した粉末試料を直ちにアセトンに浸漬し、二日間保持した。その後、吸引ろ過によりアセトンと試料を分離し、40°C で 2 日間乾燥させた。乾燥後の試料は 90 μm 篩で分級を行い、密閉容器に詰めてデシケーター内で分析まで保存した。

粉末 X 線回折の測定は、粉末 X 線回折装置 D8 シリーズ (Bruker 社製) を用い、X 線源 $\text{Cu-K}\alpha$ 、管電圧 50kV、管電流 250 mA、走査範囲 $2\theta=5-65^\circ$ 、ステップ幅 0.02° 、スキャンスピード $2^\circ/\text{min}$ の条件で行った。所定材齢のセメントペースト硬化体は、水和停止・乾燥後の粉末試料に内部標準試料としてコランダム ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) を 10 mass% 混合したものを測定に用いた。リートベルト解析はソフトウェア TOPAS (Bruker 社製) を使用して行った。定量に当たっては、 Ca_3SiO_5 (単斜晶)、 Ca_2SiO_4 (単斜晶)、 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ (立方晶)、 $\text{Ca}_2\text{AlFeO}_6$ (直方晶)、Gypsum (Gyp: 二水石膏)、Bassanite (Bas: 半水石膏)、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ (CH: 水酸化カルシウム)、エトリングライト (Ett)、モノサルフェート (Ms) の各セメント鉱物、水和物及び内部標準物質の $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ を対象とした。 Ca_3SiO_5 (単斜晶)、 Ca_2SiO_4 (単斜晶)、 $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ (立方晶)、 $\text{Ca}_2\text{AlFeO}_6$ (直方晶) の結晶構造に関するパラメータは NIST Technical Report⁽¹⁹⁾ と同様とし、Gyp, Bas, CH, Ett, Ms, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ については ICSD Database と同様とした。図 2.2-6～図 2.2-11 に測定及び解析結果を示す。解析結果に基づき、結晶質鉱物量及び非晶質量を内部標準物質 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の定量値から下式に従い算出した。

$$\begin{aligned} \text{結晶質鉱物量} &= M_x \times \frac{R}{M_a} \times \frac{100}{(100 - R)} \\ \text{非晶質量} &= \frac{100 \times (M_a - R)}{\left(M_a \times \frac{100}{(100 - R)}\right)} \end{aligned}$$

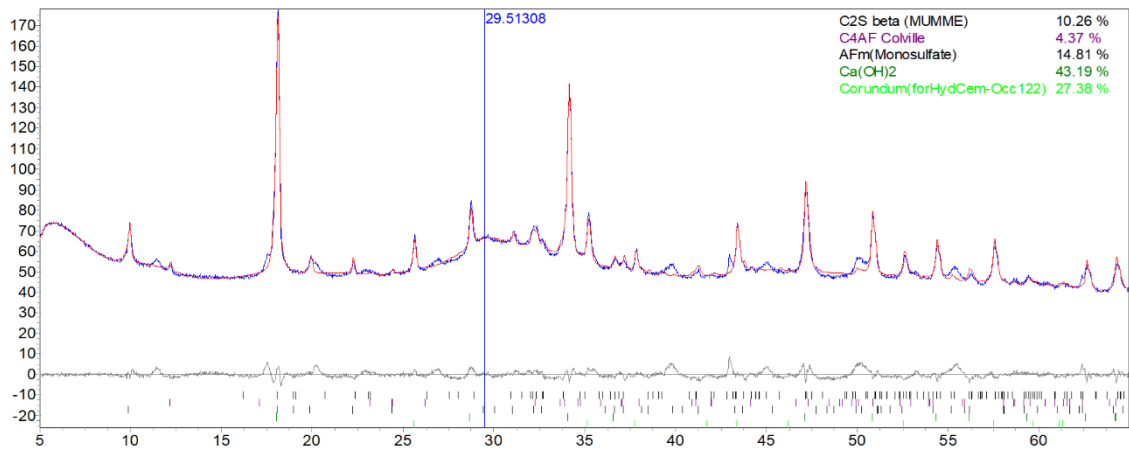


図 2.2-6 H30 プレーンセメントペースト硬化体の材齢 413 日の XRD リートベルト解析結果

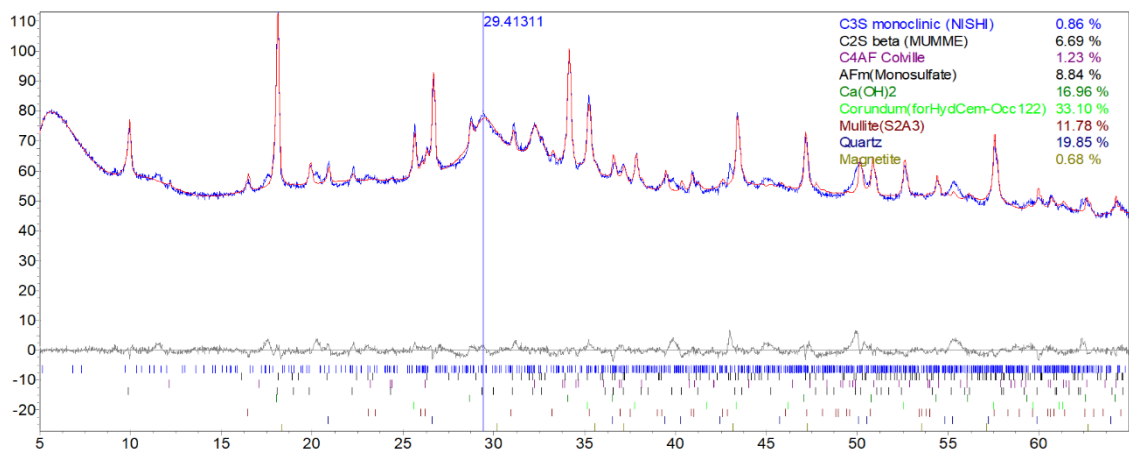


図 2.2-7 H30FA 混合セメントペースト硬化体の材齢 413 日の XRD リートベルト解析結果

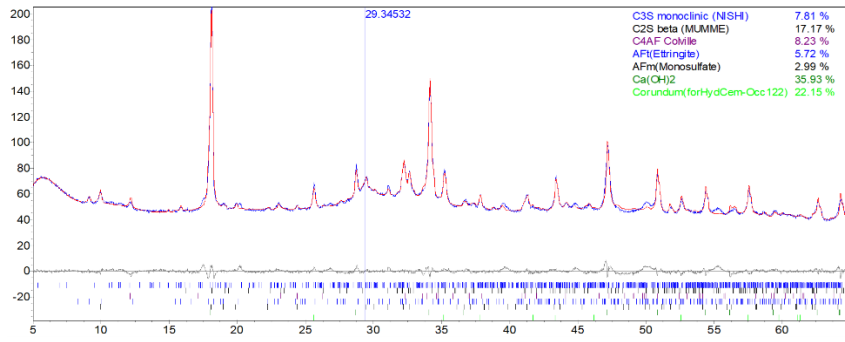


図 2.2-8 H31 プレーンセメントペースト硬化体の材齢 28 日の XRD リートベルト解析結果

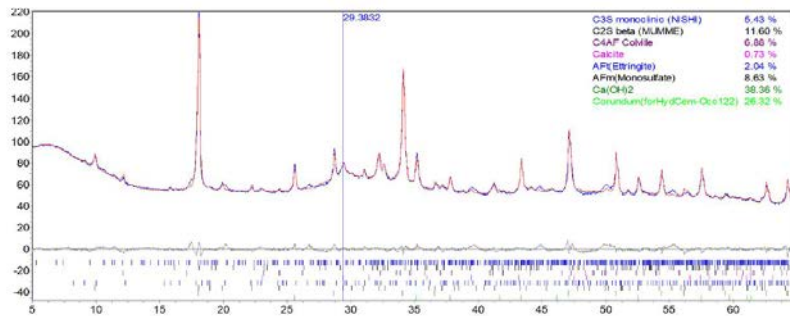


図 2.2-9 H31 プレーンセメントペースト硬化体の材齢 91 日の XRD リートベルト解析結果

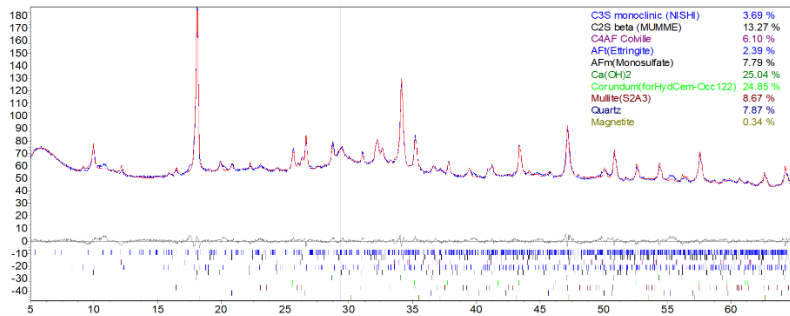


図 2.2-10 H31FA 混合セメントペースト硬化体の材齢 28 日の XRD リートベルト解析結果

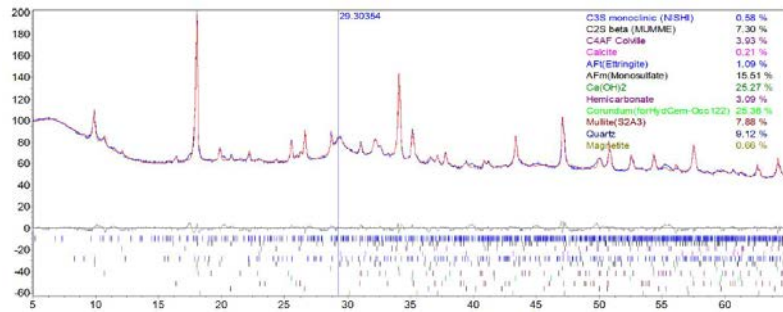


図 2.2-11 H31FA 混合セメントペースト硬化体の材齢 91 日の XRD リートベルト解析結果

②TG-DTA

CH 生成量の定量及び強熱減量測定のため、熱重量示差熱分析 TG-DTA を行った。XRD/リートベルト法と同様の水和停止処理を施した試料において、1000°Cまでの測定を行い、TG 曲線・DTA 変曲点を得た。400~450°C付近に現れる $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の脱水に由来する吸熱ピークを確認し、この際の質量減少量から $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 生成量を求めた。結果を表 2.2-24 に一覧として示す。

表 2.2-24 TG-DTA に基づく硬化体の $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 量、強熱減量

	材齢	$\text{Ca}(\text{OH})_2$ 量 (mass%)	強熱減量 (mass%)
H30 プレーンセメント ペースト硬化体	28 日※	17.3	24.6
	91 日※	17.9	24.6
	413 日	18.7	25.2
H30FA 混合セメント ペースト硬化体	28 日※	12.5	24.3
	91 日※	12.1	21.4
	413 日	6.7	21.3
H31 プレーンセメント ペースト硬化体	28 日	19.3	22.5
	91 日	20.2	23.2
H31FA 混合セメント ペースト硬化体	28 日	12.2	18.9
	91 日	12.6	21.5

(※は昨年度実施の結果)

③選択溶解法

フライアッシュの反応率を求めるため、浅賀らが行った方法を参考に選択溶解法による未反応フライアッシュ量の定量を行った。選択溶解法の手順を図 2.2-12 に示す。まず 105°C で乾燥させ冷却した遠心沈殿管(質量 m_1 g)に粉末試料 1.0g(= m_2 g)を入れ、2mol/l 塩酸 20ml を加えて、攪拌しながら 30 分間保持した。その後 4000rpm で 5 分間遠心分離を行い、上澄みを除去した後、イオン交換水を 120g になるまで加え、更に遠心分離と上澄みの除去を行った。この作業を 3 回繰り返す、次に 5%炭酸ナトリウム溶液を 30ml 加え、80°C に加熱し、時折ガラス棒で攪拌しながら 30 分間保持した。その後、4000rpm で 5 分間遠心分離を行い、上澄みを除去し、イオン交換水を 120g になるまで加え、更に 3 回遠心分離と上澄みの除去を行った。105°C で 1 日間乾燥後、遠心沈殿管と乾燥した試料の合計質量(m_3 g)を測定し、式 1 及び式 2 を用いて FA 未反応量及び FA 反応率を算出した。結果を表 2.2-25 に一覧として示す。

表 2.2-25 選択溶解法に基づくフライアッシュ反応率

	材齢	FA 反応率(%)
H30FA 混合 セメントペースト 硬化体	28 日※	3.7
	91 日※	19.3
	413 日	48.7
H31FA 混合 セメントペースト 硬化体	28 日	10.5
	91 日	11.6

(※は昨年度実施の結果)

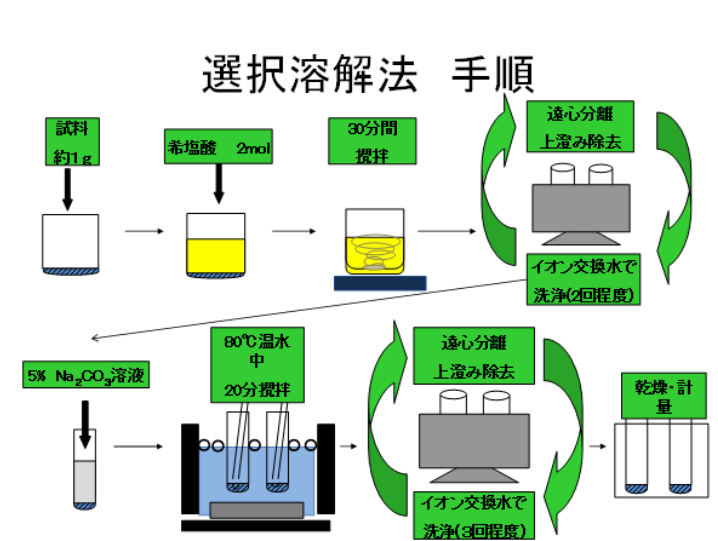


図 2.2-12 選択溶解法 フロー図

$$(m_3 - m_1) / m_2 \times 100 = \text{FA の残分}(\%)$$

… 式 1

$$(\text{FA 添加量} - \text{FA の残分}(\%)) \times 100 = \text{FA 反応率}(\%)$$

… 式 2

ここで、 m_1 : 遠心沈殿管の重量(g)、 m_2 : 測定試料重量(g)、 m_3 : 乾燥後の重量(g)

④相組成の経時変化及びプレーンセメント、フライアッシュ混合での水和反応の違い

①~③の結果に基づき、相組成を作成した。プレーンセメントペースト硬化体では、XRD 測定から得られる非晶質量を CSH 生成量とし、TG-DTA から求めた Ca(OH)_2 量、重量変化測定により求めた水量（水和停止処理前に 105°C 乾燥炉で 2 日間保持した際の重量変化率）を用いて決定した。フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、XRD 測定から得られる非晶質量を CSH と未反応フライアッシュ中の非晶質と考えて相組成を決定した（図 2.2-13、図 2.2-14）。

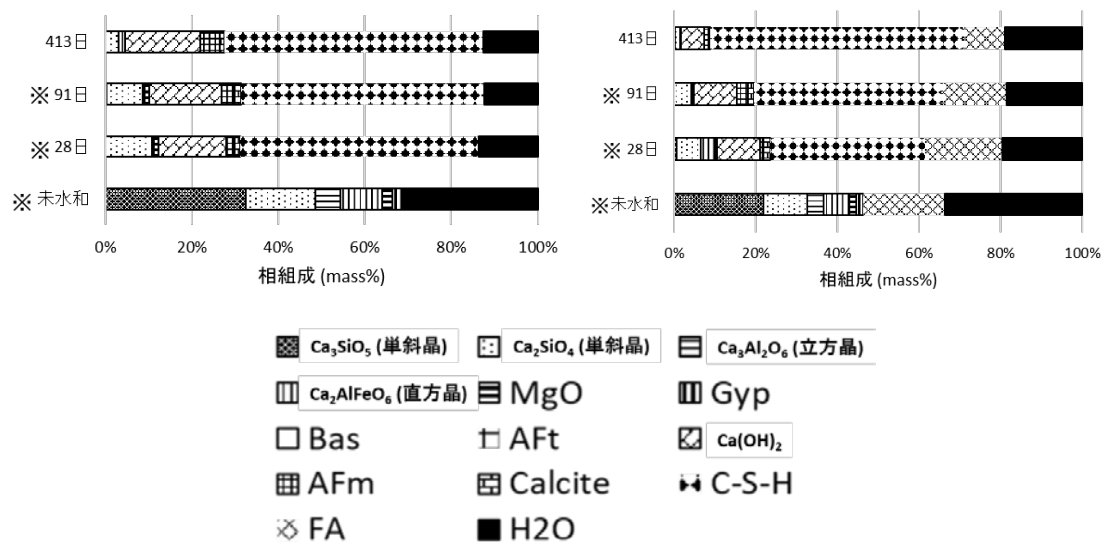


図 2.2-13 相組成経時変化（左: H30 プレーンセメントペースト硬化体、右: H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体、下: 凡例）
（※は昨年度実施の結果）

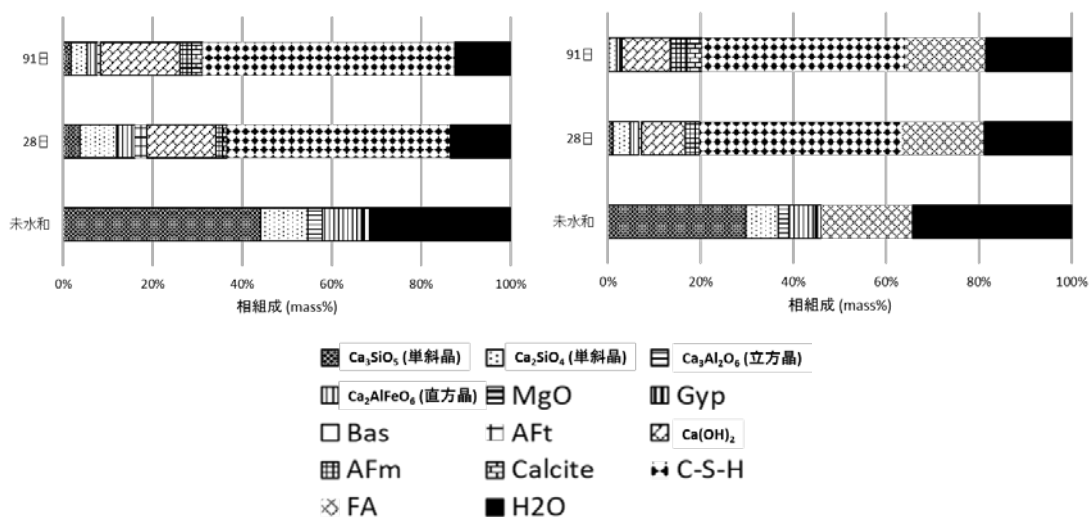


図 2.2-14 相組成経時変化（左: H31 プレーンセメントペースト硬化体、右: H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体、下: 凡例）

H30 プレーンセメントペースト硬化体と H30FA 混合セメントペースト硬化体について、図 2.2-15、図 2.2-16 に未水和カルシウムシリケート反応率の経時変化、図 2.2-17 に FA 反応率の経時変化を示す。なお、昨年度取得した 28 日及び 91 日の結果と合わせて 413 日の結果を示している。H30 プレーンセメントペースト硬化体では、 Ca_3SiO_5 (単斜晶) は 28 日の時点でほぼ 100% 反応しており、413 日では未水和の Ca_3SiO_5 (単斜晶) は XRD で全く検出されなかった。 Ca_2SiO_4 (単斜晶) は 413 日の時点でも反応進行中であり、反応率は 28 日、91 日、413 日それぞれで約 33%、約 48%、約 74% と時間経過と共に増加した。H30FA 混合セメントペースト硬化体では、 Ca_3SiO_5 (単斜晶) は 28 日の時点で反応率が約 97% であり、91 日では反応率がほぼ 100%、413 日では約 99% とほぼ反応が終了している。 Ca_2SiO_4 (単斜晶) は 413 日の時点でも反応進行中であり、反応率は 28 日、91 日、413 日それぞれで約 47%、約 60%、約 89% と時間経過と共に増加した。フライアッシュの反応率は 28 日、91 日、413 日それぞれで約 4%、約 19%、約 49% と時間経過と共に増加し、フライアッシュの反応進行が確認された。

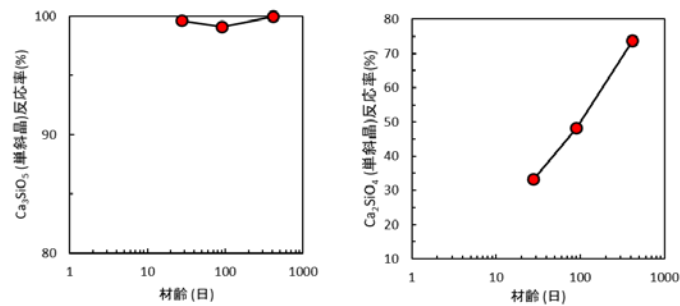


図 2.2-15 H30 プレーンセメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の経時変化

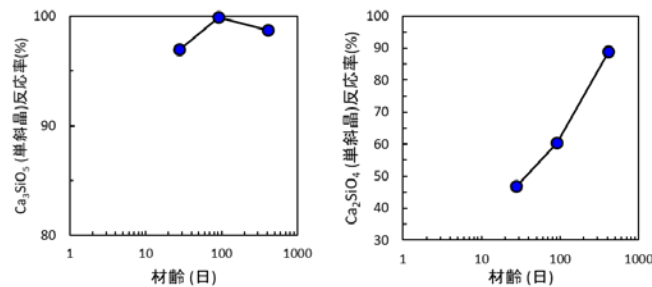


図 2.2-16 H30FA 混合セメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の経時変化

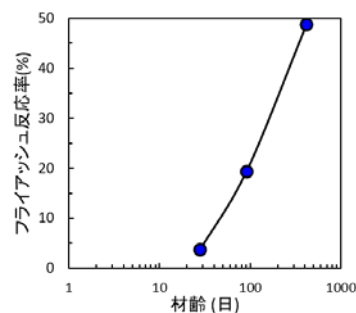


図 2.2-17 H30FA 混合セメントペースト硬化体のフライアッシュ反応率の経時変化

H31プレーンセメントペースト硬化体とH31FA混合セメントペースト硬化体について、図 2.2-18、図 2.2-19に未水和カルシウムシリケート反応率の経時変化、図 2.2-20にFA反応率の経時変化を示す。H31プレーンセメントペースト硬化体では、 Ca_3SiO_5 (単斜晶)は28日の時点で90%以上反応しており、28日から91日かけて反応率が約92%から約96%と反応の進行が確認された。 Ca_2SiO_4 (単斜晶)は28日から91日にかけて顕著に進行し、反応率が約21%から約65%に増加した。H31FA混合セメントペースト硬化体では、 Ca_3SiO_5 (単斜晶)は28日の時点で反応率が約96%であり、91日では反応率がほぼ100%となった。 Ca_2SiO_4 (単斜晶)は28日から91日にかけて顕著に進行し、反応率が約46%から約75%に増加した。フライアッシュは28日から91日にかけて反応率が約11%から約12%とほとんど変化せず、ポゾラン反応は進行しなかった。

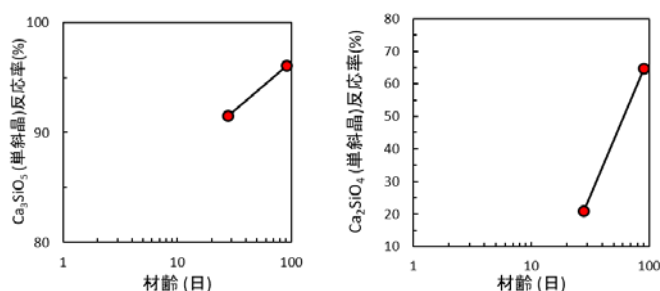


図 2.2-18 H31 プレーンセメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶)反応率の経時変化

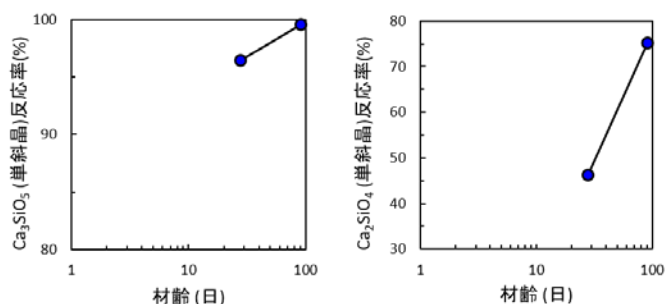


図 2.2-19 H31FA 混合セメントペースト硬化体の Ca_3SiO_5 (単斜晶)・ Ca_2SiO_4 (単斜晶)反応率の経時変化

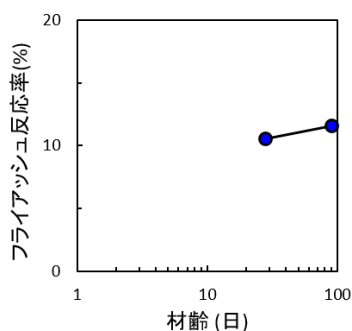
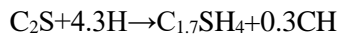
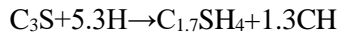


図 2.2-20 H31FA 混合セメントペースト硬化体のフライアッシュ反応率の経時変化

図 2.2-21 に H30 プレーンセメントと H30 フライアッシュ混合セメントの CH 生成量と CSH 生成量の関係を示す。セメントの CSH 生成反応は、セメントクリンカー中の無水カルシウムシリケート相 C3S 及び C2S の水和反応として式のように書ける（例えば Gartner, Maruyama, Chen, 2017⁽²⁰⁾）。



すなわち、CH 生成と共に CSH が生成する。一方で、フライアッシュ等のシリカとアルミナを主な組成とするボゾラン物質は、それ単独では水和反応を起こさないが、高 pH 環境で溶解して Si 及び Al を供給し、それらが CSH や CH と反応することで Si, Al 含有量の多い CSH 相を生成する。このような CSH 形成反応の違いは、H30 プレーンセメントと H30 フライアッシュ混合セメントの相組成変化に現れており、H30 プレーンセメントは時間経過に伴って CH 増加と共に CSH も増加している一方で、H30 フライアッシュ混合セメントは 28 日から 91 日にかけては、CH 量はほとんど変わらずに CSH 量が顕著に増加し、91 日から 413 日にかけては、CH 量が減少して CSH 量が増加している。

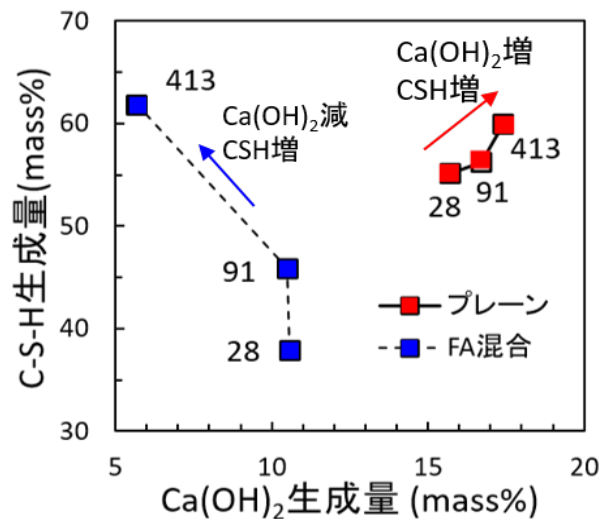


図 2.2-21 CH 生成量と CSH 生成量の関係
(H30 プレーンセメントペースト硬化体と H30FA 混合セメントペースト硬化体)

(3) 細孔構造の評価

核種移行に寄与する細孔構造の評価として、CSH ゲル中の層間・ゲル空隙及びセメントペースト硬化体中の毛細管空隙に着目し、①水銀圧入法及び水蒸気吸着法による間接的評価、①中性子小角散乱による直接的評価に向けた X 線小角散乱測定及び AFM、TEM 観察による評価を行い、細孔構造の初期状態における経時変化を確認した。

①水銀圧入法及び水蒸気吸着法による間接的評価

(a)水銀圧入法

水銀は表面張力が大きく、試料の微細な空隙中に入らないが、水銀に圧力を加えると圧力に反比例して小さい孔径を持つ空隙に水銀が圧入される。その圧力と注入された水銀の量を測定することにより細孔径分布を求めることができる。細孔が円筒形であると仮定すると、Washburn 式により圧入圧力と細孔径の関係が得られる。

$$d = \frac{-4\gamma \cos \theta}{P}$$

d: 細孔直径 (m), γ : 水銀の表面張力 (0.484N/m), θ : 水銀と試料の接触角 (130°), P: 圧入圧力 (Pa)

水銀圧入法では幅広い細孔径範囲の測定が容易に行え、また再現性が高く (333 委員会報告⁽²¹⁾)、セメントペースト硬化体の細孔量や細孔径分布の測定方法として従来頻繁に用いられている。ここでは水銀圧入量と細孔径分布の時間的変化を確認することを目的に測定を行った。試料は、水和停止を行った 2.5-10 mm 角のブロックを用意した。所定材齢に達した試料をダイヤモンドカッターを用いて 2.5-10 mm 角のブロック状に切断した。このブロック状試料をイソプロピルアルコールに浸漬し、試料から気泡が出なくなるまで 2 時間程度真空引きをした。この試料を凍結乾燥試験機 (-85°C) を用いて 2 週間処理した。乾燥後の試料はポリエチレン瓶に入れデシケーター内で保管した。水銀圧入量の測定は、オートポア (micromeritics 社製) を用いて最大圧入圧力 60,000 psi まで行い、Washburn 式に基づいて細孔径分布を求めた。なお、細孔径分布は累積圧入量の傾きに対応した log 微分細孔容積分布として示す。

図 2.2-22 に H30 プレーンセメントペースト硬化体及び H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の水銀累積圧入曲線と細孔径分布を示す。また区間ごとの変化率を図 2.2-23 に示す。なお、細孔径分布は累積圧入量の傾きに対応した log 微分細孔容積分布として示す。H30 プレーンセメントペーストでは、28 日から 91 日において、1000 nm 以上の区間で最大 0.7% の細孔量増加が見られ、1000 nm 以下の区間では最大 0.6% の減少が認められた。413 日では、28 日に比べて全区間で細孔量が減少しており、91 日と比べると 100 nm 以上の区間で顕著な細孔量減少が認められた。H30 フライアッシュ混合セメントペーストでは、28 日から 91 日において、1000 nm 以上の区間で最大約 1.4% の細孔量増加が見られ、100~1000 nm の区間では 0.6% 程度の減少、100 nm 以下では特に 10 nm 未満の細孔量の増加が顕著に認められ、約 1.1% 増加した。413 日では、28 日に比べて 10 nm 以上の区間で細孔量が減少し、10 nm 未満の細孔量は約 0.7% 増加した。

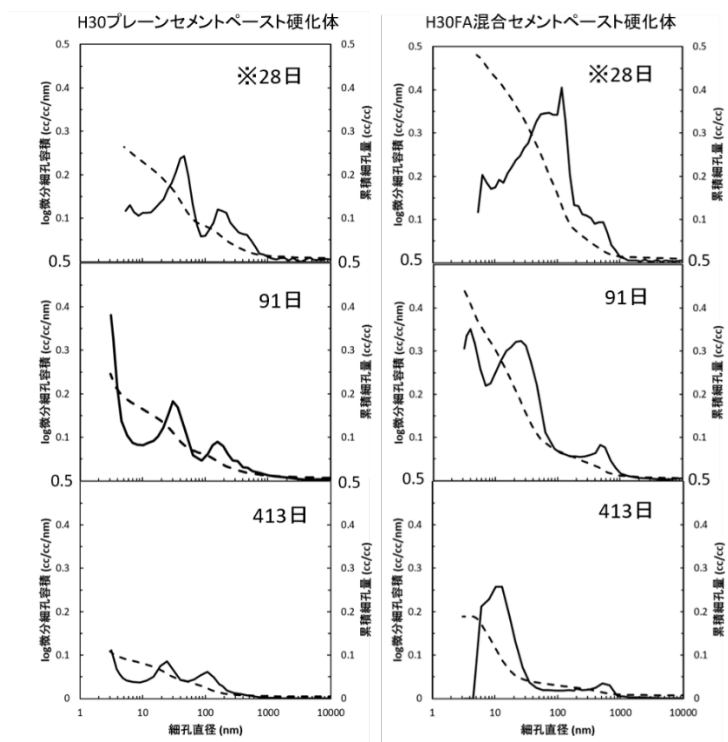


図 2.2-22 水銀累積圧入曲線（破線）及び細孔径分布（実線）
 (※は昨年度実施の結果で、測定装置はマイクロトラックベル社製 Pascal を使用)

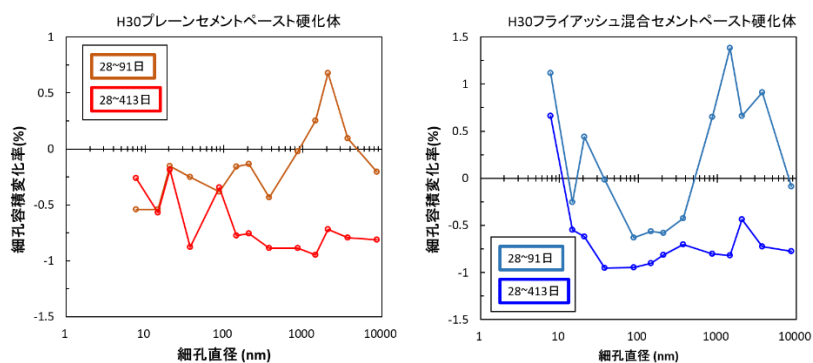


図 2.2-23 水銀圧入法に基づく細孔径分布の区間毎の経時変化率

図 2.2-24 に H31 プレーンセメントペースト硬化体及び H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の水銀累積圧入曲線と細孔径分布を示す。また区間ごとの変化率を図 2.2-25 に示す。H31 プレーンセメントペーストでは、28 日から 91 日において、100~1000 nm の区間では 0.6% 程度の減少、100 nm 以下では特に 10 nm 未満の細孔量の増加が顕著に認められ、約 1.1% 増加した。H31 フライアッシュ混合セメントペーストでは、28 日から 91 日において、1000 nm 以上の区間で最大約 1.4% の細孔量増加が見られ、100~1000 nm の区間では 0.6% 程度の減少、100 nm 以下では特に 10 nm 未満の細孔量の増加が顕著に認められ、約 1.1% 増加した。413 日では、28 日に比べて 10 nm 以上の区間で細孔量が減少し、10 nm 未満の細孔量は約 0.7% 増加した。

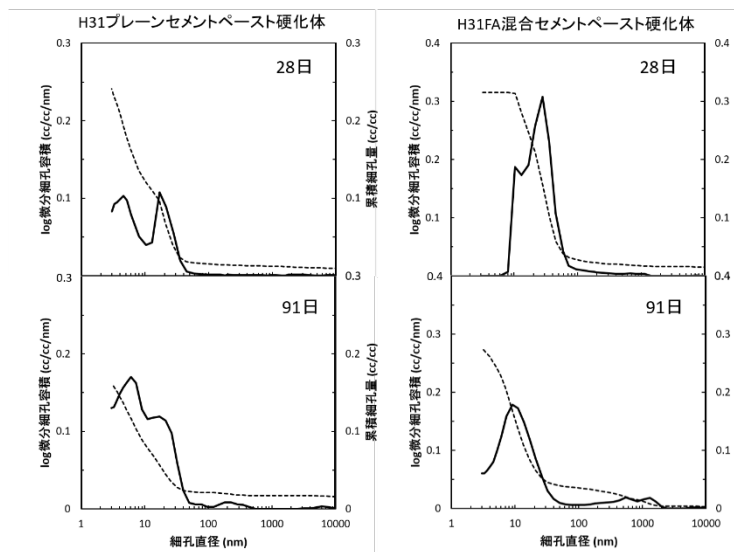


図 2.2-24 水銀累積圧入曲線（破線）及び細孔径分布（実線）

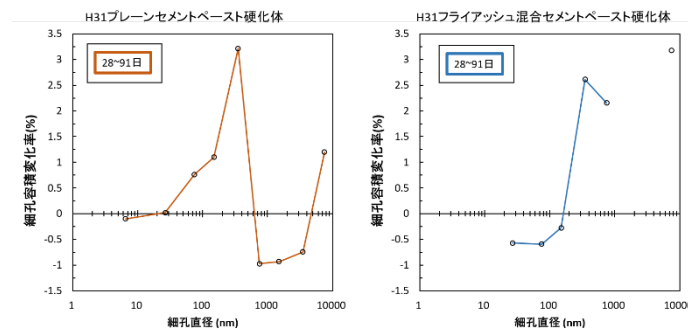


図 2.2-25 水銀圧入法に基づく細孔径分布の区間毎の経時変化率

(b)水蒸気吸着法

水蒸気吸着法による測定には、水和停止を行った粉末を試料として用意した。所定の材齢において、ハンマーを用いて1.2 mm以下まで粗砕した後、遊星ボールミルで7分間微粉碎した。微粉碎した粉末試料を直ちにイソプロピルアルコールに浸漬し、二日間保持した。その後、吸引ろ過によりイソプロピルアルコールと試料を分離し、真空環境下で7日間乾燥させた。乾燥後の試料は90 μm篩で分級を行い、密閉容器に詰めてデシケーター内で分析まで保存した。水蒸気吸着等温線の測定は、3Flex (micromeritics 社製) を用いて相対湿度およそ90%RHまでの測定範囲で行った。測定の直前に行う試料の前処理乾燥は、バキュープレップ061を用いて真空排気環境下、105°C、30分の条件で行った。

図 2.2-26に水蒸気吸着等温線を示す。H30プレーンセメントペースト硬化体では、28日から91日にかけては、特に高相対圧領域で吸着量が増加し、91日から413日にかけては全域的に吸着量が低下した。H30フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、28日から91日にかけては全域的に吸着量が増加し、91日から413日にかけては吸着量が減少した。H31プレーンセメントペースト硬化体では、28日から91日にかけて、高相対圧領域で吸着量が低下した。H31フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、28日から91日にかけて全域的に吸着量が増加した。

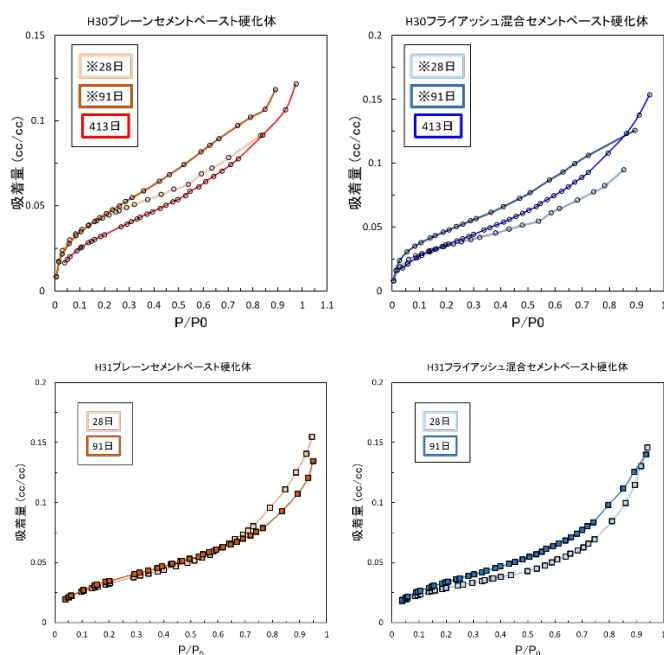


図 2.2-26 水蒸気吸着等温線の経時変化（※は昨年度実施の結果で、測定装置はマイクロトラック社製の BELSORP-aqua もしくは BELSORP-maxII を使用）

円筒形の細孔形状を仮定すると、相対圧に対応する細孔径は毛管凝縮理論に基づく Kelvin式から求めることができる。ただし、毛管凝縮理論は直径4 nm以下の細孔には適用できないことから、直径4 nm以上に相当する相対湿度の吸着量データを用いて、累積吸着量曲線及び細孔径分布を導出した。水の表面張力を $72.75 \times 10^{-3} \text{ N/m}$ として4 nmの直径を持つ細孔に毛管凝縮が起こる相対圧を見積もると相対湿度RH45%となることから、RH45%以上の吸着等温線を用いた。図 2.2-27に細孔径分布と累積吸着量曲線を示す。また区間ごとの変化率を図 2.2-28に示す。H30プレーンセメントペースト硬化体及びH30フライアッシュ混合セメント硬化体共に、10 nm以下の

細孔量は28日から91日にかけては増加し、91日から413日にかけては減少した。

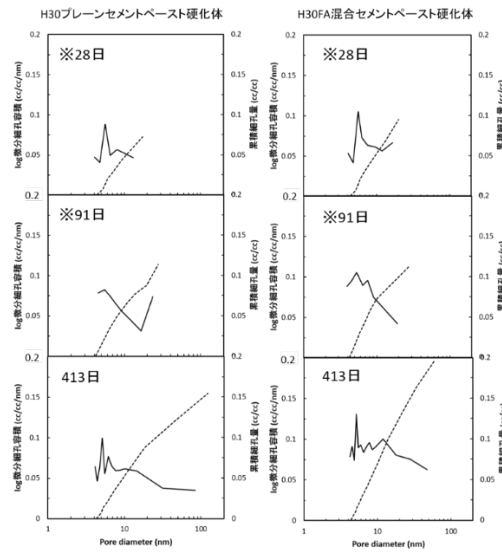


図 2.2-27 水蒸気累積吸着量曲線（破線）及び細孔径分布（実線）
（※は昨年度実施の結果）

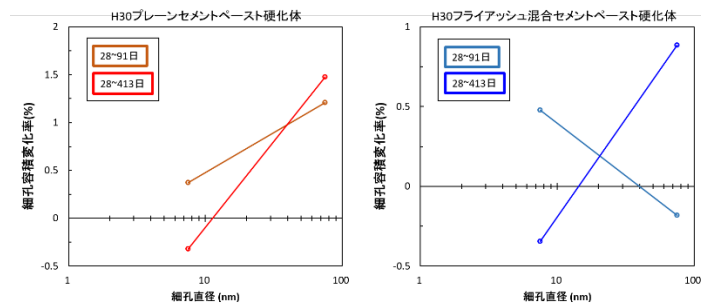


図 2.2-28 細孔径分布の区間ごとの経時変化率

図 2.2-29に細孔径分布と累積吸着量曲線を示す。また区間ごとの変化率を図 2.2-30に示す。**H31プレーンセメントペースト硬化体**において、10 nm以下の細孔量は28日から91日にかけて減少した。**H31フライアッシュ混合セメントペースト硬化体**では、10 nm以下の細孔量は28日から91日にかけて増加した。

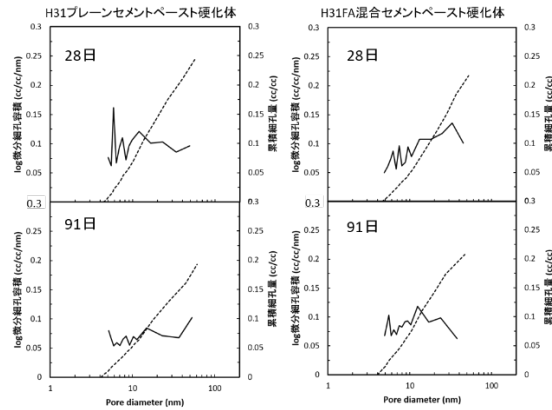


図 2.2-29 水蒸気累積吸着量曲線（破線）及び細孔径分布（実線）

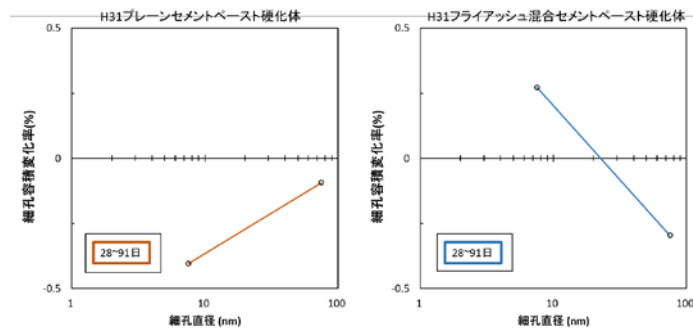


図 2.2-30 細孔径分布の区間ごとの経時変化率

以上から、間接的手法による細孔構造の測定結果についてまとめる。図 2.2-31に、H30プレーンセメントペースト硬化体及びH30フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の材齢413日における水銀圧入法及び水蒸気吸着法、それぞれに基づく細孔径分布を示す。プレーンセメントペースト硬化体とフライアッシュ混合セメントペースト硬化体共に、水銀圧入法と水蒸気吸着法の結果は一致せず、異なる細孔径分布を示した。この違いは、それぞれの手法で測定対象となっている空隙が異なるためと考えられる。CSHゲル内部のゲル空隙や層間空隙は、CSH層構造が持つ表面電位等に由来する電場勾配が存在する空間である。このような空隙に対して、 H_2O 等の極性を持つ分子の場合は層構造と電子のやり取りをし、可逆的な化学反応により侵入できるのに対し、 N_2 等の極性を持たない分子は反応を起こさないため侵入することができない。図 2.2-32に示すように、水蒸気及び窒素の吸着等温線を比較すると、低相対圧における吸着量が顕著に異なっており、BET比表面積の比にして7倍水蒸気の方が吸着しやすい。よって、水蒸気吸着法では基本的にゲル空隙や層間空隙（CSH層構造と相互作用がある空間）を測定していると考えられる。一方、窒素と同様極性を持たない水銀はゲル空隙や層間空隙には入り得ず、毛細管空隙（水和物の隙間の物理的な空間）を測定していると考えられる。よって、ゲル空隙や層間空隙に相当する10 nm以下の空隙については、水銀圧入法では的確な評価ができていないと考えられる。よって、水銀圧入法と水蒸気吸着法の細孔径分布が一致しなかったことは妥当と考えられる。核種移行評価においては、細孔中の H_2O の物理化学的状態を考慮する必要があり、水蒸気吸着結果に基づく解釈は有効と考えられる。

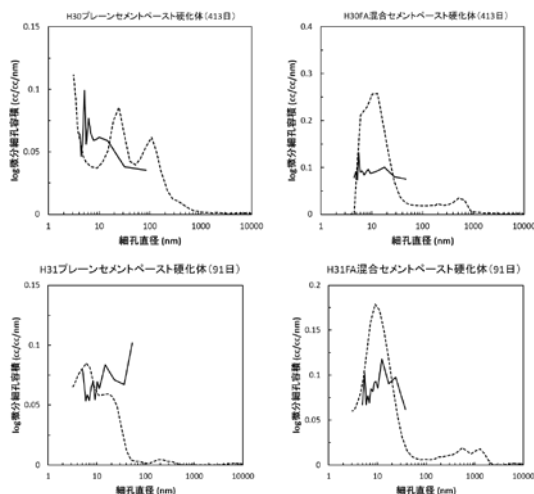


図 2.2-31 水銀圧入法（破線）と水蒸気吸着法（実線）に基づく細孔径分布の比較

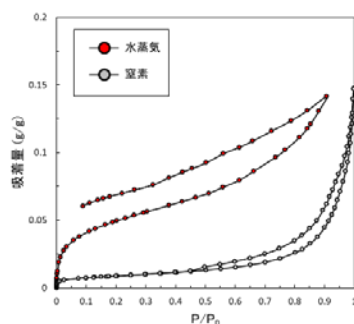


図 2.2-32 H30 プレーンセメントペースト硬化体（材齢 91 日）に対する水蒸気吸着等温線と窒素吸着等温線の比較

②中性子小角散乱法による細孔構造直接的評価に向けた X 線小角散乱測定、AFM・TEM 観察

中性子は、電氣的に中性であるため、物質内の強力なクーロンポテンシャルの影響を受けず、原子核近傍で核力によって散乱される。中性子の核散乱振幅は、X 線とは異なり原子番号とは無関係で、核種で大きく異なる。この性質をうまく利用することにより、酸素、炭素、水素などの軽元素の構造決定、あるいは原子番号が接近した元素の区別が X 線に比べて容易にできる。セメントの特徴である CSH の非晶質性及び細孔中の湿潤状態を鑑みると、中性子はセメントペーストの分析方法として優れている。中性子散乱法はセメント結晶の物質構造や結合度、水分の結合状態等を分析する方法として期待されているが、中でも小角散乱法は空隙の形や大きさなどを分析する方法として有力視されている（例えば土木学会 333 委員会報告書⁽²²⁾）。

ここでは、今後の中性子小角散乱測定に必要な分析・解析評価に資する知見を取得するため、セメントペーストを対象として放射光施設 (SPring-8) 及びラボ機 (株式会社リガク製 NANOPIX) の X 線源を用いた小角散乱測定を実施した。また AFM 観察、TEM 観察を行い、X 線小角散乱解析結果との整合性を確認した。

X 線小角散乱測定用の試料は、水和停止を行った研磨片として用意した。所定の材齢に達した試料をダイヤモンドカッターを用いて 10×5×1mm 程度の大きさに切り出した。この試料をイソプロピルアルコールに浸漬し、試料から気泡が出なくなるまで 2 時間程度真空引きをした。その後、X 線が透過する厚さまでイソプロピルアルコールを潤滑液として SiC 耐水研磨紙を用いて研磨した。X 線小角散乱の測定は、H30 プレーンセメントペースト硬化体及び H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の 413 日材齢試料については、超小角及び広角領域の小角散乱測定を SPring-8 で、超小角 (以下「USAXS」という。)・小角 (以下「SAXS」という。)・広角領域 (以下「WAXS」という。) の測定を実験室機で行い、重複する領域の測定データの比較を行った。H31 プレーンセメントペースト硬化体、H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の 28 日及び 91 日材齢試料については、実験室機で USAXS、SAXS、WAXS 測定を行った。SPring-8 での測定は、ビームライン BL03XU にて、X 線波長 $\lambda=0.1$ nm、検出器は超小角散乱用に PILATUS1M、広角散乱用に SOPHIAS、測定時間は 0.5s、超小角散乱測定においては Mo 60 μm の減衰板を用いた。実験室での測定は、NANOPIX (株式会社リガク製) を用いて行った。X 線波長に 0.154 nm、光学系はポイントコリメーション (2PHR、実験室 USAXS の検討では 2PSHR)、検出器は 2 次元検出器 HyPix-6000、カメラ長は 401 mm (USAXS では 1312 mm)、測定時間は 900 秒とした。

まず超小角～小角～広角領域の広い 2θ 領域の散乱プロファイルを図 2.2-33 に示す。横軸は式 3 で表される散乱ベクトルの絶対値 q である。なお、グラフの重なりを防ぐため、試料 TC-02 のデータは 1 桁縦にシフトして示している。

$$q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}$$

…式 3

q : 散乱ベクトルの絶対値、 θ : 散乱角、 λ : 入射線源の波長

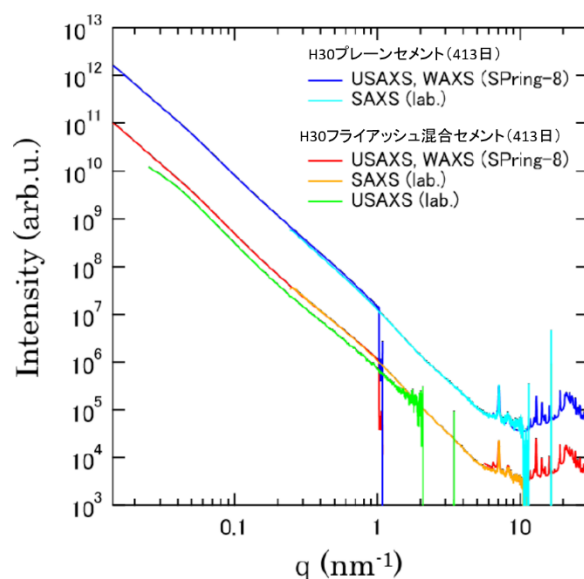


図 2.2-33 X 線小角散乱プロファイル (SPring-8、実験室機)

USAXS、SAXS、WAXS はそれぞれ同一の装置設定で一度に測定ができないため、重なり合う q 領域があるように測定を行って結果の一致を確認した。図 2.2-33 に示すように、重複領域で散乱が一致し、良好に測定をできていることがわかる。また USAXS の結果について、SPring-8 での測定と実験室の装置での測定結果を比較すると、実験室の装置では小角領域の測定限界が SPring-8 に比べて大きい、 $q > 0.025 \text{ nm}^{-1}$ では散乱プロファイルの形状がほぼ一致しており、実験室のデータを用いても解析は可能であると判断した。

H30 プレーンセメントペースト硬化体及びH30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の材齢 413 日について、X 線小角散乱測定を行い、電子密度の均質なディスク状空隙又は粒子を考えてフラクタル構造を仮定し、式 4、式 5、式 6 を用いて結果のフィッティングを行った (図 2.2-34)。表 2.2-26 に結果を示す。今回行った解析では、プレーンセメントペースト硬化体、フライアッシュ混合セメントペースト硬化体で違いは見られなかった。空隙又は粒子の平均サイズとして、等価球半径として約 11 nm が得られ、ディスク状を仮定した場合直径約 80 nm、厚さ 1.5 nm 程度と高いアスペクト比を示した。

$$I(q) = N\rho^2 \langle P(q) \rangle_{l,r} S(q) \quad \dots \text{式 4}$$

$I(q)$: 理論散乱強度、 N : 粒子数、 ρ : 電子密度差、 $\langle P(q) \rangle$: 形状因子、 $S(q)$: 干渉因子

$$P(q, r, l) = (2l\pi r^2)^2 \frac{2}{q^2 r^2} \left[1 - \frac{(2qr)J_1}{qr} \right] \left[\frac{\sin(ql)}{ql} \right]^2 \quad \dots \text{式 5}$$

r : 円柱の半径、 l : 厚さ、 J_1 : 1 次のベッセル関数

$$S(q) = 1 + \left(\frac{\xi}{R_e} \right)^D \cdot \Gamma(D + 1) \cdot \frac{\sin[(D - 1) \tan^{-1}(q\xi)]}{(D - 1) \cdot [1 + (q\xi)^2]^{(D-1)/2} \cdot q\xi} \quad \dots \text{式 6}$$

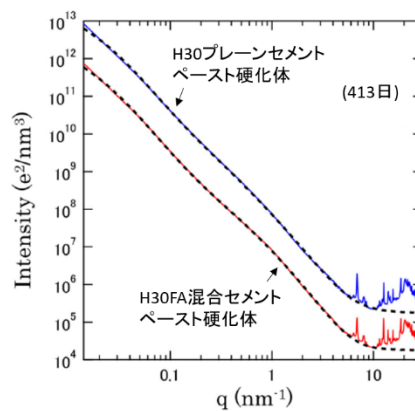


図 2.2-34 H30 プレーン、H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の X 線小角散乱プロファイル (実線: 測定結果、破線: 解析結果)

表 2.2-26 X線小角散乱に基づく空隙又は粒子径
(H30 プレーン、H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体 413 日材齢)

	H30 プレーン セメント ペースト硬化体	H30 フライアッシュ 混合セメント ペースト硬化体
等価球半径 R_e (nm)	10.7	10.6
平均ディスク直径 $2r$ (nm)	83	80
$2r$ の標準偏差 (nm)	51	50
平均ディスク厚さ l (nm)	1.5	1.4
l の標準偏差 (nm)	2.0	1.3

※平均ディスク直径の値は平均ディスク厚さに比べて精度が低い

X線小角散乱の解析から得られたセメントペースト硬化体中の空隙又は粒子のサイズについて、実際に観察される微細組織との対応を確認するため、AFM 及び TEM 観察を行った。AFM、TEM 観察に当たり、100 μm 厚程度の研磨片を試料表面の平滑性に留意して作製し、SEM (日本電子 JSM-6010LA) 及び EPMA (日本電子 JXA-8530F) により予備観察を行い、CSH ゲル部分を特定した。特定した部分について、Park 社製の NX10 を用いて AFM 観察を行った。TEM 試料は 100~200 nm 程度の厚さの薄膜として用意する必要があり、収束イオンビーム装置 FIB (日本電子 FIB4000) を用いて加工を行った。TEM 観察には日本電子 JEM2800 を用いて加速電圧 200kV の条件で行った。

図 2.2-35 に H30 プレーンセメント材齢 413 日の AFM 観察結果を示す。矢印に示すように、数 100 nm の大きさの CSH ゲル粒子が観察された。AFM の観察結果は X 線小角散乱の解析結果とは対応せず、より高倍率で観察される構造と対応することが示唆された。そこで TEM を用いた高分解能観察を行った。図 2.2-36 に H30 プレーンセメント材齢 413 日の TEM 観察結果を示す。CSH ゲルは 5 nm 程度の粒径の細粒粒子で構成される部分と、10 nm 程度の厚さでアスペクト比が大きい繊維状の粒子からなる部分に分けることができる。観察を行った範囲内では、細粒粒子で構成される部分が多かった。5 nm 程度の細粒粒子で構成される部分には、数 nm ~10 nm 程度の空隙が確認できた。また繊維状粒子で構成される部分は繊維の隙間に扁平な形状の空隙が存在し、最大で約 10 nm \times 数十 nm の大きさの空隙が確認できた。

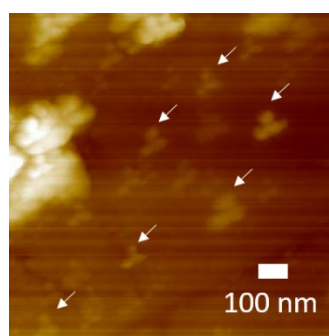


図 2.2-35 H30 プレーンセメント 413 日材齢の AFM 像
(視野: 3 μm \times 3 μm 、試料高さに応じたコントラストがついている)

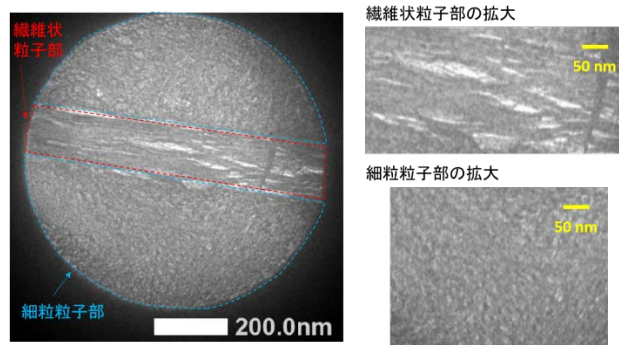


図 2.2-36 H30 プレーンセメントの TEM 像（暗部が CSH 粒子、明部が空隙を表す）

小角散乱の強度は、粒子と空隙の電子密度差（又は散乱長差）を反映したものとなり、得られるサイズが空隙のものか粒子のものか、小角散乱法単独では判断できない。そこで TEM 観察を行ったが、観察された空隙・粒子共にサイズや形態が類似しており、判断をつけるには至らず、課題となった。検討に当たっては、小角散乱プロファイルは試料全体からの散乱を反映し、試料中の空隙又は粒子の平均的な大きさ・形状を示す一方、TEM 像は nm スケールの視野の局所的な情報であることに留意して検討を進める必要がある。また球形粒子を仮定し、CSH の化学組成が既知の場合には、空隙や粒子の径分布を求める解析式が Pearson らによって提案されているが、解析ソフトウェアが市販されているわけではなく、TEM 観察結果が示すように、空隙や粒子の形状を単純な球形とは仮定できないことから、今回は径分布の導出まで至らず、今後の課題となった。さらに、今回は水和停止させて測定を行ったが、専用の試料セルを開発すれば水和停止させずに測定できることも小角散乱法の強みであり、湿潤状態での性能評価をするに当たり重要な手法となり得る。

H31 プレーンセメントペースト硬化体及びH31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体について、材齢経過に伴う空隙又は粒子の平均サイズ・形状について確認するため、材齢 28 日及び 91 日のそれぞれの試料について、水和停止処理をし実験室機を用いて X 線小角散乱測定を行った。結果を図 2.2-37、表 2.2-27 に示す。28 日から 91 日にかけては、H31 プレーン・H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体共にサイズが減少する傾向を示した。特にディスク形状の厚み方向の変化が大きく、H31 プレーンセメントペースト硬化体で 4 分の 1 に、H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体で 2 分の 1 に減少した。

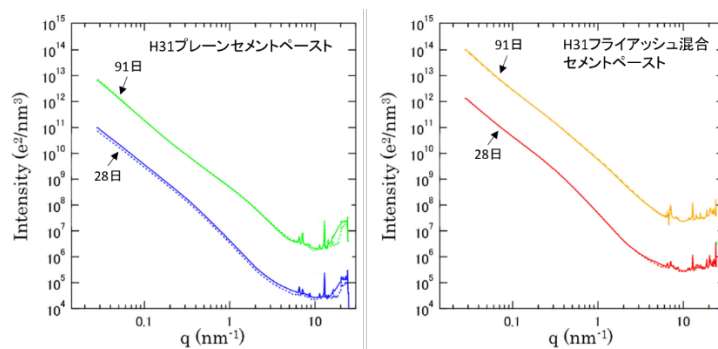


図 2.2-37 H31 プレーン、H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の X 線小角散乱プロファイル (実線: 測定結果、破線: 解析結果)

表 2.2-27 X 線小角散乱に基づく空隙又は粒子径 (H31 プレーン、H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体 28、91 日材齢)

	H31 プレーン セメントペースト硬化体		H31 フライアッシュ 混合セメントペースト硬化体	
	28 日	91 日	28 日	91 日
Re (nm)	14.7	9.4	17.9	15.3
2r (nm)	86	78	101	124
標準偏差 (nm)	54	49	66	81
l (nm)	3.7	1.0	4.4	2.1
標準偏差 (nm)	3.4	3.4	0.9	2.3

※平均ディスク直径の値は平均ディスク厚さに比べて精度が低い

(4) CSH ゲルの安定性評価

①トリメチルシリル誘導体化法 (TMS 法) による重合度評価

ケイ酸カルシウム水和物(CSH)は、セメントの主要鉱物であるエーライト(C_3S)、ビーライト(C_2S)やポゾラン材料の水和により生成され、結晶性が低く前項の XRD では差分法により定量はできても形態や構造までは把握することはできない。CSH の構造は、カルシウム(Ca)、ケイ素(Si)と水分子の結合から成るが、水和物は多種多様であり Ca/Si 比で議論されることが多い。ただし、これでは結合水や、ここの水和物まで踏み込んだ議論はできていない。そこで、近年有機化合物の構造解析で用いられる核磁気共鳴(NMR)を用いた CSH の構造解析が行われてきている。NMR により Si 原子や H 原子の結合状態を測定することにより Si の結合長(ケイ酸鎖長)を測定することができる。ケイ酸イオン SiO_4^{4-} は中央の Si 原子に O 原子が 4 個配列した単量体(Monomer)である。これが 2 つ集まり、O 原子 1 つと共有すると $Si_2O_7^{6-}$ となり、2 量体(Dimer)となる。セメント鉱物である C_3S や C_2S 中のケイ酸イオンは単量体の状態で存在し、これらが水和し CSH を形成する過程で、ケイ酸イオンは鎖状に重合し多量体にシフトするとされている。本研究では CSH 構造をシリケート鎖の鎖長分布を測定する手段として杉ノ原によるトリメチルシリル誘導体化法(TMS 法)によりサンプルを作り、ガスクロマトグラフを用いることで、CSH のケイ酸の重合度が、変化する傾向を知るために、単量体(Monomer)から 6 量体(Hexamer)までのケイ酸イオンの構成比(ケイ酸鎖長分布)を測定した。

図 2.2-38 に杉ノ原による TMS 化法を改良した小泉の処理手順を示す。本手法では、トリメチルクロロシラン(TMCS)3ml、ヘキサメチルジシロキサン(HMDS)9ml、及びメタノール 6ml を使用する。これらに粉末試料 0.2g を加え 20 分間攪拌する。メタノール溶媒の使用により反応系の溶媒は静置すると親水系溶媒の下層と疎水系溶媒の上層の 2 層に分離するが、反応中は攪拌することにより双方の溶媒はほぼ均一に分散する。反応後、TMS 化された成分は、主に HMDS より成る上層に移動するため、下層を分離除去することにより、TMS 化試料の効率的な回収及び濃縮が容易に行える。誘導体化反応直後の反応系には TMS 化された試料のほか、反応の過程で生じた HCl や未反応の TMCS も含まれており、これらを除去する為に回収した疎水系有機溶媒層(上層)を中性になるまで数回水洗いし、これらの不要成分を溶液抽出にて除去した。そして完全に TMS 化を行うため、非水系イオン交換樹脂を混和し 12 時間放置する。その後、ろ過によりイオン交換樹脂を除去し、得られた液相をエバポレータにより除去した後、得られた TMS 誘導体を 500 μ l のテトラヒドロフラン(THF)で溶解し、ガスクロマトグラフ分析用のサンプルとした。なお、本法の性質上、水和又は未水和セメントペースト部及びポゾラン反応により生成した CSH に限り、TMS 誘導体化を受ける。そのため、未反応フライアッシュや骨材は分析対象より除外される。

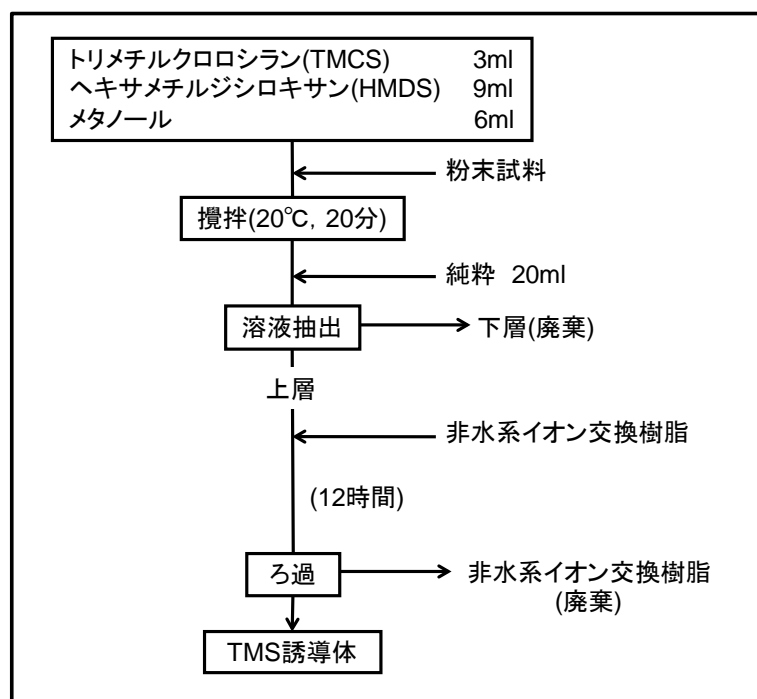


図 2.2-38 TMS 化法の処理手順

表 2.2-28 に H30 プレーンセメントペースト硬化体の TMS 分析結果を示す。H30 の未水和セメントは単量体が 90%を占めている。TMS の分析結果を見ると、材齢 28 日では、単量体は 36%まで減少し、2 量体が 51%で最も卓越している。材齢 91 日においては単量体が 25%まで減少し、2 量体が 62%と増加したが、413 日においては単量体が 37%、2 量体が 51%と、28 日以降 2 量体が最も卓越する状態ではあるが、単量体及び 2 量体量の変化は単調ではない。XRD に基づく Ca_3SiO_5 (単斜晶), Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率評価では、 Ca_3SiO_5 (単斜晶) は 28 日の時点ではほぼ 100% 反応している一方、 Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率は 28 日で 33.2%, 91 日で 48.1%, 413 日で 73.6% と材齢経過に伴って徐々に反応が進行していることから、未水和セメントに起因する単量体は単調に減少していると解釈できる。よって、28 日から 91 日にかけては単量体から 2 量体への重合反応が進行したと言えるが、91 日から 413 日にかけては明確な変化は認められない。3 量体以上の多量体はいずれの材齢においても 15%程度であり、2 量体生成以降の顕著な重合反応は認められず、平均重合度としては約 1.9~2.0 にとどまっている。

表 2.2-28 TMS による重合度分布分析結果 (H30 プレーンセメントペースト硬化体)

H30 プレーンセメントペースト硬化体	単量体	2 量体	3 量体	4 量体	5 量体	6 量体	平均重合度
未水和※	90.38	8.13	1.12	0.31	0.07	0.00	1.12
28 日※	36.42	50.90	5.10	2.95	4.24	0.39	1.89
91 日※	24.99	62.48	6.78	3.13	2.39	0.24	1.96
413 日	30.68	57.40	4.47	2.58	4.23	0.64	1.94

(※は昨年度実施の結果)

表 2.2-29 に H31 プレーンセメントの TMS 分析結果を示す。H31 の未水和セメントは単量体が 97% で H30 に比べ単量体に富む。水和後の TMS 分析結果を見ると、材齢 28 日では、単量体 51% に対し 2 量体が 39% と、H30 プレーンセメントの材齢 28 日に比べて単量体が多く、平均重合度は 1.7 となっている。XRD による Ca_3SiO_5 (単斜晶), Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率の結果はそれぞれ 92%, 21% と、H30 プレーンセメントの材齢 28 日に比べてセメントの反応が進んでいないことから、未水和セメント由来の単量体による影響で平均重合度が低くなっていると解釈できる。91 日にかけては、 Ca_3SiO_5 (単斜晶), Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率がそれぞれ 92% → 96%、21% → 65% とセメントの水和反応が進み、これによって 2 量体が生成されたと解釈することができる。平均重合度は 1.9 となり、H30 プレーンセメントペースト硬化体と同程度まで重合反応が進んでいる。

表 2.2-29 TMS による重合度分布分析結果 (H31 プレーンセメントペースト硬化体)

H31 プレーンセメント	単量体	2 量体	3 量体	4 量体	5 量体	6 量体	平均重合度
未水和	96.92	2.79	0.20	0.09	0	0	1.04
28 日	51.38	38.74	3.36	1.56	4.47	0.48	1.71
91 日	35.15	51.92	5.76	2.37	4.17	0.64	1.90

「0」は検出されなかったことを意味する。

表 2.2-30 に H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の TMS 分析結果を示す。なお、フライアッシュ中の Si は 3 次元網目状の大規模ネットワーク構造となっており、TMS では検出できない (今回行ったガスクロマトグラフの測定では 1~6 量体を検出可能) ため、未水和状態における重合度分布はプレーンセメントと同様である。未水和状態で 90% を占めていた単量体は、材齢 28 日では 34% まで減少し、2 量体が 51% で最も卓越している。材齢 91 日においては単量体が 24% まで減少し、2 量体が 64% と増加したが、413 日においては単量体が 37%、2 量体が 49% と、28 日以降 2 量体が最も卓越する状態ではあるが、単量体及び 2 量体量の変化は単調ではなく、プレーンと同様の傾向となった。XRD に基づく Ca_3SiO_5 (単斜晶), Ca_2SiO_4 (単斜晶) 反応率及び選択溶解法による FA 反応率評価では、 Ca_3SiO_5 (単斜晶) 反応率は 28 日 97.0%、91 日 99.9%、413 日 98.7% とほぼ反応しきっている一方、 Ca_2SiO_4 (単斜晶) 及び FA 反応率は 28 日でそれぞれ 46.7% と 3.7%、91 日で 60.3% と 19.3%、413 日で 88.8% と 48.7% となり、材齢経過に伴って徐々に反応が進行している。フライアッシュの反応では Si 及び Al が供給され、Si による架橋や Al による CASH 生成が起こり得る。TMS の結果からは 3 量体以上の増加は認められないため、Si による架橋が起こっているとは考えられない。CASH については、TMS 誘導体化の過程で $\text{Al}\dots\text{O}\dots\text{Si}$ の結合は切断されるため、重合度分布には変化を及ぼさず、TMS 法では検出されないため、プレーンと同様の結果となったと解釈できる。

表 2.2-30 TMS による重合度分布分析結果 (H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)

H30FA 混合セメント ペースト硬化体	単量体	2 量体	3 量体	4 量体	5 量体	6 量体	平均 重合度
未水和※	90.38	8.13	1.12	0.31	0.07	0.00	1.12
28 日※	33.63	50.55	5.90	3.83	5.55	0.54	1.99
91 日※	24.01	64.38	6.13	2.97	2.34	0.17	1.96
413 日	29.80	55.19	7.27	2.89	4.25	0.60	1.98

(※は昨年度実施の結果)

表 2.2-31 に H31 フライアッシュ混合セメントの TMS 分析結果を示す。H31 に購入したフライアッシュは、H30 に購入したフライアッシュと異なって TMS 化反応を若干受け、主に単量体が検出された。しかしながら、ガスクロマトグラフ分析において測定されたピーク面積値はセメントに比べて著しく低かった (10 分の 1 未満) ことから、重合度分布に対する未反応フライアッシュの寄与はかなり低いと考えられる。ここでは材料のセメント及びフライアッシュの分析結果と配合に基づき、フライアッシュ混合セメントの未水和状態の重合度分布を計算した。未水和状態で 96% を占めていた単量体は、材齢 28 日では単量体 47.6% まで減少し、2 量体が 41.2% となった。平均重合度は 28 日と 91 日いずれにおいても 1.8 と同程度であるが、91 日では 2 量体が単量体を上回って 49% に達しており、単量体から 2 量体への重合反応が進行したことがわかる。また、3 量体以上の割合は少なく、H30 フライアッシュ混合セメントと同様に Si による架橋はほとんど認められなかった。

表 2.2-31 TMS による重合度分布分析結果 (H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)

H31FA 混合セメント ペースト硬化体	単量体	2 量体	3 量体	4 量体	5 量体	6 量体	平均 重合度
未水和	95.98	3.39	0.56	0.06	0	0	1.05
28 日	47.11	41.42	4.13	1.81	4.93	0.59	1.78
91 日	38.88	49.35	5.23	2.39	3.57	0.58	1.84

以上のように、TMS 分析では、プレーン及びフライアッシュ混合セメントで明瞭な違いは認められず、セメントの水和反応によりいずれも単量体から 2 量体への重合反応が起こっていることがわかった。H30 プレーンセメントペースト硬化体と H31 プレーンセメントペースト硬化体の重合度分布の違いについては、セメントの鉱物組成が大きく影響していると考えられ、Na, K 含有量の影響を確認することは出来なかった。

②²⁹Si-, ²⁷Al-NMR 法による CSH 中の Si, Al の化学結合環境の評価

TMS 法と並び、²⁹Si-NMR もケイ酸アニオン骨格の鎖長を評価するための手段としてしばしば用いられている。TMS 法ではシリケートアニオンの鎖長を直接的に定量分析している一方、²⁹Si-NMR は、Si 原子が酸素原子を介していくつの Si 原子と隣接しているか、結合環境に応じた違いが検出される（土木学会 333 委員会報告⁽²³⁾）。²⁹Si-NMR において、結合環境の違いは化学シフト位置の違いとして現れ、図 2.2-39 に示すように隣接する Si 原子の個数を n として、 Q^n としてあらわされる。ここでは、単鎖のアルミノシリケートアニオンを仮定し、先行研究に基づいて各化学シフト値の範囲を設定して波形分離解析を行っている。この際、 Q^2 はアルミノシリケートアニオン中における席（アニオン構造における役割）の違いを考慮して、図 2.2-39 の bridging 席を占有する場合 Q^2_b 、pairing 席を占有する場合 Q^2_p と表す。また隣接する 2 つの原子のうち 1 つが Al の場合、 $Q^2_b(1Al)$ や $Q^2_p(1Al)$ と表現している。このように NMR 法では CSH のケイ酸アニオン骨格を仮定しなければ結果の解釈を行えないため、シリケートアニオン鎖長を測定する方法としては、直接的な分析ができる TMS 法に比べ精度が劣る。しかしながら、²⁹Si-NMR と ²⁷Al-NMR を併用することにより、TMS 法では区別できない CSH と CASH のシリケート（アルミネート）アニオン鎖の違いを検出することができる点でメリットがある。ここではフライアッシュ混合による CASH 生成、及び CSH と CASH の構造の違いを確認するために ²⁹Si-NMR 及び ²⁷Al-NMR 分析を行った。

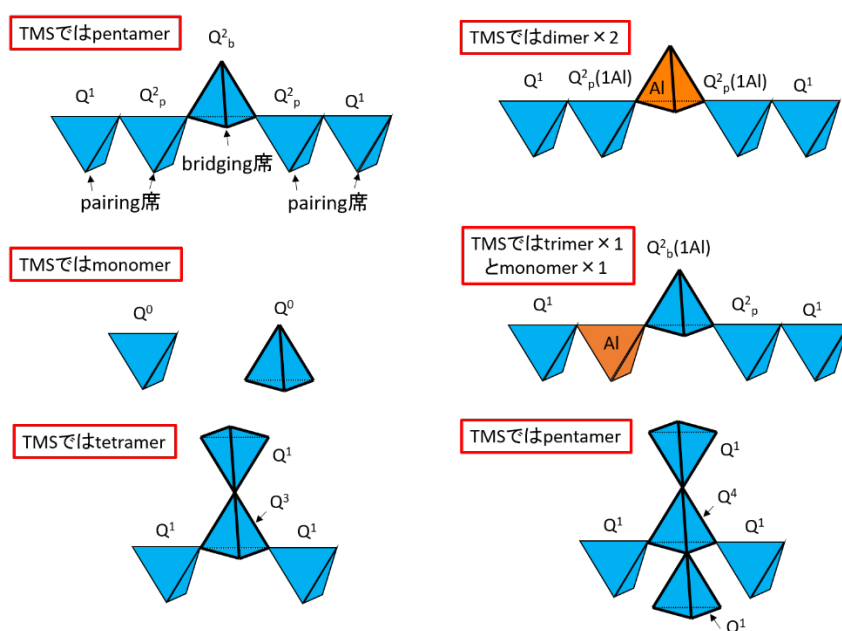


図 2.2-39 NMR 法において想定するケイ酸 (Al を含む) アニオン骨格

機器は、日本電子(株)RESONANCE ECA700 を用いた。測定条件は表 2.2-32、表 2.2-33 に示した。²⁹Si-NMR スペクトルの解析は、化学シフト位置とピークの半値幅をパラメータとし、化学シフト位置の初期値を文献値^(24,25)に従って表 2.2-34 のように与え、最小二乗法によって実施した。ピーク形状を表す関数はローレンツ関数/ガウス関数比 0.5 のフォークト関数を用いた。なお、フライアッシュを含む試料については、予めフライアッシュに由来するピークをバックグラウンドとして差し引いたのち、解析処理を行った。²⁷Al-NMR については、波形分離を実施せず、C(A)SH 中の Al に由来する 4 配位のシグナルの確認とした。

表 2.2-32 ²⁹Si-NMR の測定条件

<u>²⁹Si-NMR 材料測定時の測定条件</u>	<u>²⁹Si-NMR 水和試料測定時の測定条件</u>
磁場強度 16.44T (1H 共鳴周波数 700MHz)	磁場強度 16.44T (1H 共鳴周波数 700MHz)
測定核 ²⁹ Si	測定核 ²⁹ Si
共鳴周波数 139.08MHz	共鳴周波数 139.08MHz
NMR 管 4mm φ (ジルコニア製ローター)	NMR 管 4mm φ (ジルコニア製ローター)
測定方法 DD/MAS	測定方法 DD/MAS
パルス幅 45°	パルス幅 45°
待ち時間 50sec	待ち時間 50sec
積算回数 200 回 (測定時間: 約 3 時間)	積算回数 1600 回 (測定時間: 約 23 時間)
MAS 10000Hz	MAS 10000Hz
化学シフト基準 シリコンゴム (-22.34ppm) 外部標準	化学シフト基準 シリコンゴム (-22.34ppm) 外部標準

表 2.2-33 ²⁷Al-NMR の測定条件

<u>²⁷Al-NMR 材料測定時の測定条件</u>	<u>²⁷Al-NMR 水和試料測定時の測定条件</u>
磁場強度 16.44T (1H 共鳴周波数 700MHz)	磁場強度 16.44T (1H 共鳴周波数 700MHz)
測定核 ²⁷ Al	測定核 ²⁷ Al
共鳴周波数 182.43MHz	共鳴周波数 182.43MHz
NMR 管 3.2mm φ (ジルコニア製ローター)	NMR 管 3.2mm φ (ジルコニア製ローター)
測定方法 DD/MAS	測定方法 DD/MAS
パルス幅 15°	パルス幅 15°
待ち時間 0.5sec	待ち時間 0.5sec
積算回数 6400 回 (測定時間: 約 1 時間)	積算回数 6400 回 (測定時間: 約 1 時間)
MAS 18000Hz	MAS 18000Hz
化学シフト基準 AlK(SO ₄) ₃ (0ppm) 外部標準	化学シフト基準 AlK(SO ₄) ₃ (0ppm) 外部標準

表 2.2-34 ²⁹Si-NMR のシグナル位置初期値

帰属	化学シフト (ppm)
Q ⁰	-74.0 ~ -65.0
Q ² _b (1Al)	-77.2 ~ -76.0
Q ¹	-80.0 ~ -79.2
Q ² _p (1Al)	-82.0 ~ -81.0
Q ² _b	-83.5 ~ -82.0
Q ² _p	-86.0 ~ -85.0
Q ³	-94.0 ~ -90.0

H30 プレーンセメント硬化体の $^{29}\text{Si-NMR}$ スペクトルを図 2.2-40 に示す。未水和セメントでは単量体に由来する Q^0 のピークのみ観測されている。水和が進むにつれて、 Q^0 ピークの強度は相対的に弱くなり、Al も含めた多量体中の Si に由来する $\text{Q}^1\text{--Q}^3$ のピークが確認されている。 Q^1 ピークは多量体の末端（一つの Si と隣接）の Si に、 Q^2 は 2 つの Si と隣接する Si に、 Q^3 は 3 つの Si と隣接する Si にそれぞれ由来する。なお、 Q^2 は化学結合環境（結晶構造中の席の違い、Al と隣接の有無）によって化学シフト値が異なるため、波形分離解析を行って化学結合環境毎の波形積分強度を計算した。表 2.2-35 に結果を、また図 2.2-41 に 28 日の強度を基準として化学環境毎の変化割合を示す。28 日から 91 日にかけては、 Q^0 の強度が減少し、 Q^1 、 Q^2_{b} 、 Q^2_{p} 、 Q^3 の強度増加、 $\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$ のみ減少が見られている。91 日から 413 日かけては、 Q^0 、 Q^1 、 $\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$ 、 $\text{Q}^2_{\text{p}}(1\text{Al})$ で減少、 Q^2_{b} 、 Q^2_{p} 、 Q^3 で増加と 28 日から 91 日とは異なる変化を示した。 Q^0 の減少は、セメント反応率が材齢経過と共に単調減少する XRD の結果と整合している。材齢経過に伴い単調増加している Q^2_{b} 、 Q^2_{p} 、 Q^3 は少なくとも 3 量体以上のシロキサン鎖の増加を意味するが、TMS の結果とは一致しない。

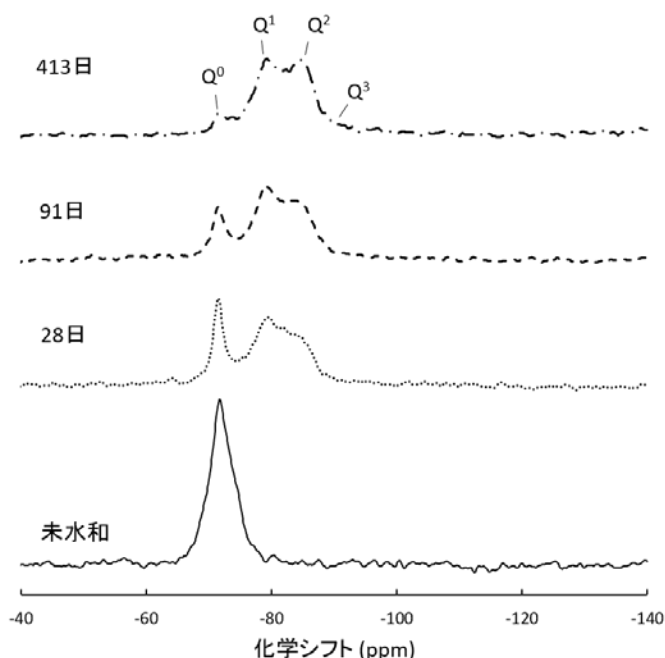


図 2.2-40 H30 プレーンセメントの $^{29}\text{Si-NMR}$ スペクトルの経時変化

表 2.2-35 $^{29}\text{Si-NMR}$ の波形分離結果 (H30 プレーンセメントペースト硬化体)

H30 プレーン セメント ペースト硬化体	Q^0	Q^1	$\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$	$\text{Q}^2_{\text{p}}(1\text{Al})$	Q^2_{b}	Q^2_{p}	Q^3
28 日※	164.79	192.50	71.16	78.32	84.32	105.07	15.35
91 日※	137.66	254.82	66.55	111.65	100.20	178.63	19.92
413 日	45.75	241.58	51.96	100.41	117.15	221.45	32.46

(※は昨年度実施の結果)

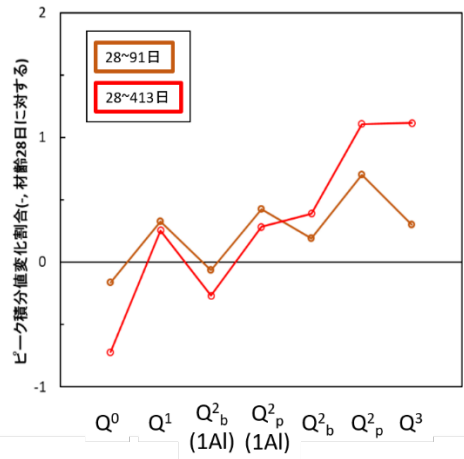


図 2.2-41 波形分離結果の経時変化割合

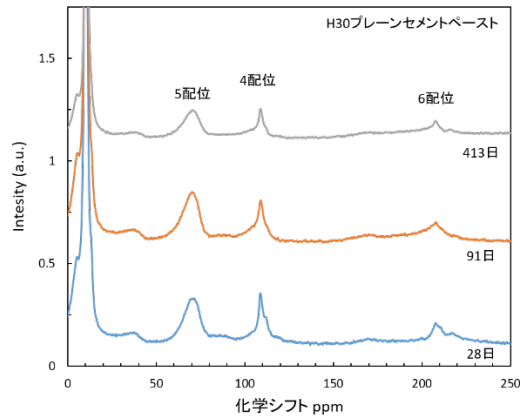


図 2.2-42 H30 プレーンセメントペースト硬化体の ²⁷Al-NMR スペクトル

表 2.2-36 ²⁷Al-NMR 波形分離結果 (H30 プレーンセメントペースト硬化体)

H30 プレーン セメント ペースト硬化体	積分値			比率		
	4 配位	5 配位	6 配位	4 配位	5 配位	6 配位
28 日※	19.78	2.23	122.24	0.14	0.02	0.85
91 日※	22.20	2.47	123.84	0.15	0.02	0.83
413 日	20.13	2.37	124.15	0.14	0.02	0.85

(※は昨年度実施の結果)

H31 プレーンセメントペースト硬化体の $^{29}\text{Si-NMR}$ スペクトルを図 2.2-43 に示す。未水和セメントでは単量体に由来する Q^0 のピークのみ観測されている。水和が進むにつれて、 Q^0 ピークの強度は相対的に弱くなり、Al も含めた多量体中の Si に由来する $Q^1\sim Q^3$ のピークが確認されている。表 2.2-37 に波形分離解析の結果得られた化学結合環境毎の波形積分強度を、また図 2.2-44 に 28 日の強度を基準として化学環境毎の変化割合を示す。28 日から 91 日にかけては、 Q^0 の強度が減少し、 Q^1 、 $Q^2_p(1Al)$ 、 Q^2_b 、 Q^2_p 、 Q^3 の強度増加、 $Q^2_b(1Al)$ のみ減少が見られている。 Q^0 の減少は、セメント反応率が材齢経過と共に単調減少する XRD の結果と整合している。材齢経過に伴い単調増加している Q^2_b 、 Q^2_p 、 Q^3 は少なくとも 3 量体以上のシロキサン鎖の増加を意味するが、TMS の結果とは一致しない。

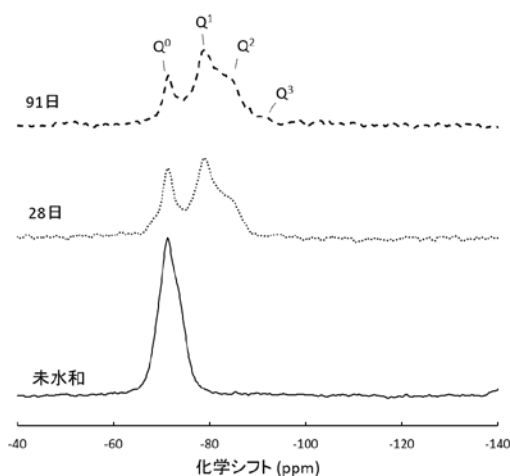


図 2.2-43 H31 プレーンセメントの $^{29}\text{Si-NMR}$ スペクトルの経時変化

表 2.2-37 $^{29}\text{Si-NMR}$ の波形分離結果 (H31 プレーンセメントペースト硬化体)

H31 プレーンセメントペースト硬化体	Q^0	Q^1	$Q^2_b(1Al)$	$Q^2_p(1Al)$	Q^2_b	Q^2_p	Q^3
28 日	179.75	239.48	93.77	99.02	126.80	83.80	3.41
91 日	118.07	232.59	90.81	107.34	159.57	106.42	47.69

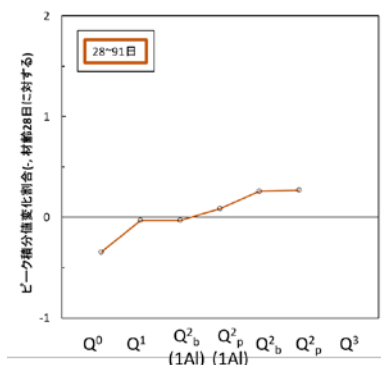


図 2.2-44 波形分離結果の経時変化割合

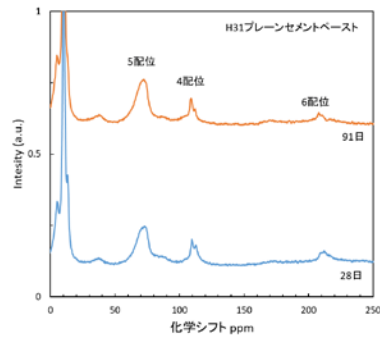


図 2.2-45 H31 プレーンセメントペースト硬化体の ^{27}Al -NMR スペクトル

表 2.2-38 ^{27}Al -NMR 波形分離結果 (H31 プレーンセメントペースト硬化体)

H31 プレーン セメント ペースト硬化体	積分値			比率		
	4 配位	5 配位	6 配位	4 配位	5 配位	6 配位
28 日	32.94	3.52	125.39	0.21	0.00	0.79
91 日	33.35	4.75	119.66	0.21	0.03	0.76

H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の $^{29}\text{Si-NMR}$ スペクトルを示す。未水和セメントでは単量体に由来する Q^0 のピークのみ観測されている。未反応フライアッシュは、主に非晶質シリケートガラスによって構成されており、シリケートネットワーク構造に対応する Q^4 ピークが観測されている。28日以降は、 Q^0 ピークの強度は相対的に弱くなり、アルミノケイ酸鎖中の Si に由来する $\text{Q}^1\sim\text{Q}^3$ のピークが出現している。プレーンの場合と同様に波形分離を行った結果を表 2.2-39 に示す。また 28 日を基準として化学環境毎の経時変化割合を図 2.2-47 に示す。28 日から 91 日にかけては、 Q^0 の強度が減少し、多量体については Q^1 、 $\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$ 、 Q^2_{b} 、 Q^3 で減少、 $\text{Q}^2_{\text{p}}(1\text{Al})$ 、 Q^2_{p} の増加が認められる。91 日から 413 日にかけては、 Q^0 、 Q^1 は 28 日から 91 日と同様に減少を示すが、 $\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$ 、 Q^2_{b} 、 Q^3 で増加・ $\text{Q}^2_{\text{p}}(1\text{Al})$ 、 Q^2_{p} で減少と 28 日から 91 日とは逆の変化を示した。91 日から 413 日にかけては、 $^{27}\text{Al-NMR}$ において 4 配位 Al の有意な増加が見られており（図 2.2-48、表 2.2-40）、同時に $\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$ の増加が見られることから、CASH 中において Al は pairing 席に入っていると解釈することができる。

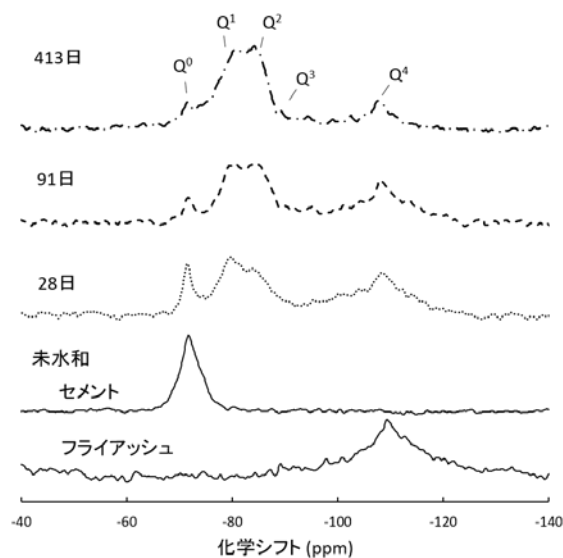


図 2.2-46 H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の $^{29}\text{Si-NMR}$ スペクトルの経時変化

表 2.2-39 $^{29}\text{Si-NMR}$ の波形分離結果 (H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)

H30FA 混合セメント ペースト硬化体	Q^0	Q^1	$\text{Q}^2_{\text{b}}(1\text{Al})$	$\text{Q}^2_{\text{p}}(1\text{Al})$	Q^2_{b}	Q^2_{p}	Q^3
28 日※	150.32	243.89	56.85	134.08	74.52	183.66	30.47
91 日※	65.18	207.70	26.44	169.61	68.99	246.43	24.18
413 日	56.39	179.71	64.64	103.73	113.45	194.19	39.77

(※は昨年度実施の結果)

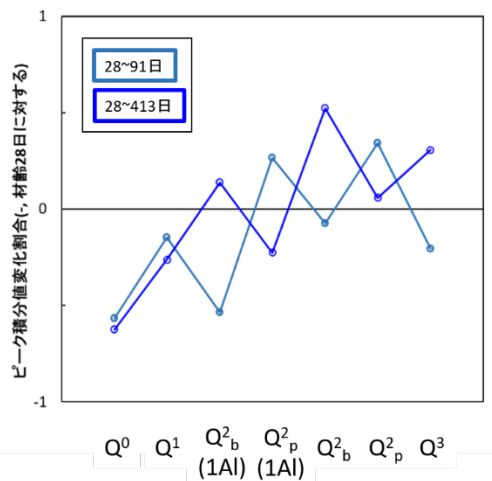


図 2.2-47 波形分離結果の経時変化割合

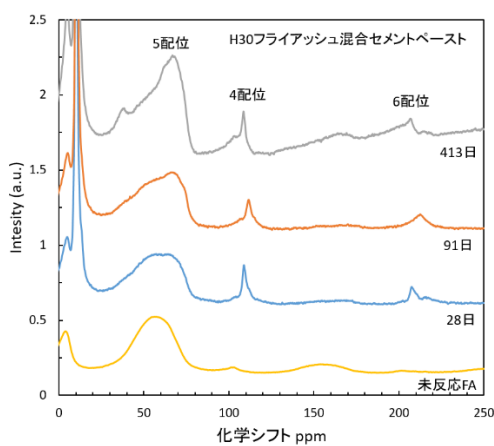


図 2.2-48 H30 フライアッシュ混合セメントペーストの ^{27}Al -NMR スペクトル

表 2.2-40 ^{27}Al -NMR 波形分離結果 (H30 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)

H30FA 混合 セメント ペースト硬化体	積分値			比率		
	4 配位	5 配位	6 配位	4 配位	5 配位	6 配位
28 日※	17.53	4.40	124.30	0.12	0.03	0.85
91 日※	21.83	5.97	123.04	0.14	0.04	0.82
413 日	37.11	10.15	123.15	0.22	0.06	0.72

(※は昨年度実施の結果)

H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の²⁹Si-NMR スペクトルを図 2.2-49に示す。未水和セメントでは単量体に由来する Q⁰ のピークのみ観測されている。未反応フライアッシュは、シリケートネットワーク構造に対応する Q⁴ ピークに加え、H30 に使用したフライアッシュと異なって Q³ ピークが現れる領域までなだらかなショルダーピークが観測されている。28 日以降は、Q⁰ ピークの強度は相対的に弱くなり、アルミノケイ酸鎖中の Si に由来する Q¹~Q³ のピークが出現している。波形分離を行った結果を表 2.2-41 に示す。また 28 日を基準として化学環境毎の経時変化割合を図 2.2-50 に示す。28 日から 91 日にかけて、Q⁰ の強度が減少し、多量体については Q¹ はほとんど変化が見られず、Q²_b(1Al)、Q²_bが減少、Q²_p(1Al)、Q²_p、Q³ の増加が認められる。²⁷Al-NMR においては、4 配位 Al の有意な増加が見られており (図 2.2-51、表 2.2-42)、同時に Q²_p(1Al)の増加が見られることから、CASH 中において Al は bridging 席に入っていると解釈することができる。

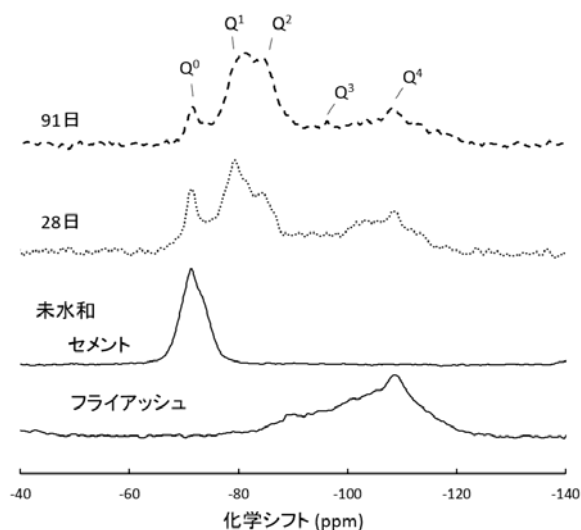


図 2.2-49 H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体の²⁹Si-NMR スペクトルの経時変化

表 2.2-41 ²⁹Si-NMR の波形分離結果 (H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)

H31FA 混合セメント ペースト硬化体	Q ⁰	Q ¹	Q ² _b (1Al)	Q ² _p (1Al)	Q ² _b	Q ² _p	Q ³
28 日	136.01	196.92	90.42	136.88	148.14	106.66	16.75
91 日	83.40	195.49	52.30	183.00	90.53	209.09	33.61

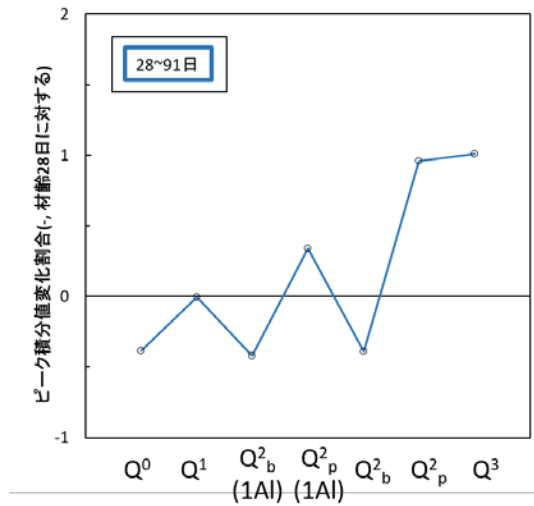


図 2.2-50 波形分離結果の経時変化割合

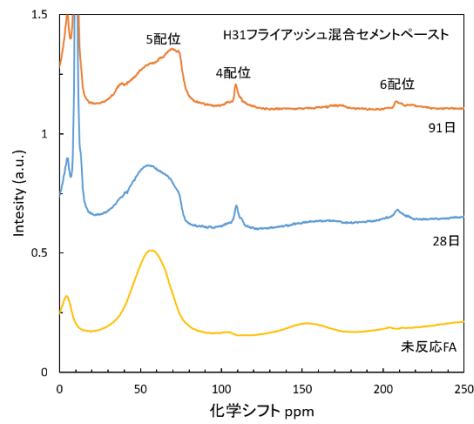


図 2.2-51 H31 フライアッシュ混合セメントペーストの ^{27}Al -NMR スペクトル

表 2.2-42 ^{27}Al -NMR 波形分離結果 (H31 フライアッシュ混合セメントペースト硬化体)

H31FA 混合 セメント ペースト硬化体	積分値			比率		
	4 配位	5 配位	6 配位	4 配位	5 配位	6 配位
28 日	16.18	8.16	120.49	0.11	0.06	0.83
91 日	32.72	7.82	115.63	0.21	0.05	0.74

TMS の結果はプレーンセメントペースト硬化体及びフライアッシュ混合セメントペースト硬化体共に 2 量体を主体としたシロキサン結合となっていることを示していた一方、 $^{29}\text{Si-NMR}$ においては 3 量体以上のシロキサン結合に帰属される Q_2^b や $\text{Q}_2^b(1\text{Al})$ 、 Q^3 がプレーン・フライアッシュ混合共に優位に検出されており、TMS 法と NMR 法でシロキサン結合の解釈には矛盾が見られる。これは、 $^{29}\text{Si-NMR}$ の波形分離解析において設定している各化学結合環境の化学シフト値や半値幅等のパラメータや解析の収束条件が適切でないことを示唆していると考えられる。よって NMR の結果を定量的に活用するに当たっては、まだ技術的な検討が必要となる。

$^{29}\text{Si-NMR}$ と $^{27}\text{Al-NMR}$ の結果から、CASH の構造について考察する。フライアッシュ混合セメントペースト硬化体では、材齢経過に応じて 4 配位 Al の積分値増加が見られ、Al がシロキサン結合鎖を架橋し CASH を生成していることが示唆された。H30 フライアッシュ混合セメントでは、4 配位 Al の積分値増加に応じて $\text{Q}_2^b(1\text{Al})$ の増加が見られ、pairing 席への Al 固溶が考えられた一方、H31 フライアッシュ混合セメントでは、 $\text{Q}_2^p(1\text{Al})$ の増加が見られ、bridging 席への Al 固溶が考えられた。これは、材料のセメントやフライアッシュによって生成される CASH 構造に違いが生じている可能性も否定はできないが、先に上げた $^{29}\text{Si-NMR}$ の波形分離解析の技術的問題によることも考えられ、今後の検討課題となる。

2.2.5 性能評価における技術的視点や課題

平成 31 年度は、セメント協会が販売するプレーンセメントである「研究用セメント」と「フライアッシュ（能代発電所産）」を材料として用意した。「研究用セメント」は JIS で定められたセメントにおいて後添加される高炉スラグやフライアッシュ等の少量混合成分を含まないプレーン材料であるものの、原材料として天然鉱石以外にリサイクル材を用いており、ロット毎の品質ばらつきが懸念される。実際に化学組成分析や鉱物組成分析、水和発熱特性分析を行った結果、平成 30 年度に製造した「純粋セメント」と比べた際、化学組成は類似しているものの、鉱物組成や水和発熱特性は大きく異なっていることが明らかとなった。また「フライアッシュ（能代発電所産）」については、平成 30 年度から継続して能代発電所産の製品を用意したが、実際に化学組成分析や鉱物組成分析、水和発熱特性分析を行った結果、ポズラン反応に寄与する非晶質量に 10%弱の差が確認された。「研究用セメント」及び「フライアッシュ（能代発電所）」を用いて作製した「プレーンセメントペースト硬化体」及び「フライアッシュ混合セメントペースト硬化体」の化学性能（粉末 X 線回折や TG-DTA、フライアッシュ選択溶解による評価）は、平成 30 年度に「純粋セメント」をベースに作製した硬化体のものと明らかに異なっていた。セメント硬化体の性能評価では、水和反応過程が重要となるため、市販されているセメントを用いた場合には、性能評価妥当性判断の視点として材料の品質評価（品質ばらつきがもたらす影響評価）が不可欠となることが改めて示された。

核種移行に係る性能評価において重要な細孔構造については、平成 31 年度は、①直接的な手法として X 線小角散乱法及び AFM・TEM 観察、②間接的手法として水銀圧入法及び水蒸気吸着法を用いて、初期状態の確認を行った。その結果、直接的な手法の技術的課題として、細孔径分布を導出するための解析手法を検討・開発する必要があること、湿潤状態での測定を行うための実験セル開発が必要であることの 2 点が挙げられ、また間接的手法の課題として、水蒸気吸着等温線の解析手法を検討・開発する必要があることが挙げられる。

人工バリアとしての長期的な性能を評価する上で重要となる CSH 安定性については、平成 31 年度は、①トリメチルシリル誘導体化（TMS）法による重合度分布と、②²⁹Si-, ²⁷Al-NMR 法による化学結合環境の分析を行い、CSH と CASH ゲルの構造について、初期状態の確認を行った。その結果、TMS 法は CSH ゲル中のシロキサン結合鎖重合過程の分析に適していることが示された。また、²⁹Si-, ²⁷Al-NMR 法は CASH ゲルの構造変化の分析に活用できる可能性があるものの、NMR スペクトルの波形分離解析はまだ改善の余地があり、TMS 法の結果と整合性を取りつつ検討して行く必要性が示された。

2.3 人工バリアの長期性能を確保する材料設計に係る科学的・技術的知見の取得

2.3.1 背景と目的

中深度処分に係る廃棄物埋設地の設計においては、人工バリアは 300 年を超える長期にわたり放射性核種の移行を抑制する性能を有する必要がある。そのためには、人工バリアの設計が重要な役割を有しており、その設計過程の妥当性を評価することが求められる見込みである。特に主要な放射性核種の移行を抑制するためには、使用する材料を適切に選択する材料設計及び部材としての性能を確保する構造設計の両方の設計が必要と考えられる。このような設計は、要求性能に対する設計目標値を明確にしなければ行えないため、要求性能と設計目標値の関係性の設定に関する科学的・技術的知見の取得が必要である。

本事業では、ベントナイト系材料とセメント系材料とが地下水を介して接触することによる鉱物の溶解や生成・沈殿がベントナイト系人工バリアの長期性能に与える影響について、その妥当性判断に必要となるベントナイト系材料とセメント系材料の界面で発生する可能性がある鉱物の溶解や生成・沈殿の化学反応及びそれによる放射性核種の移行を抑制する性能（主に低透水性）への影響の程度に関する科学的・技術的知見を取得する。

具体的には、国内外の機関等で考慮している（地球化学計算の際に考慮する）鉱物リストや天然事例・人工類似物に係る研究も含めた既往研究を踏まえて、ベントナイト系材料及びセメント系材料の主たる構成鉱物、並びに両者の界面で発生する可能性があると考えられる二次鉱物の溶解や生成・沈殿の化学反応に係る情報を整理する。また、これら情報を踏まえて、これまでに構築してきた現行の鉱物モデルのうち、主に鉱物リストにおいて選定している二次鉱物の妥当性について検討する。さらに、核種移行抑制性能への影響の観点から地球化学計算を行う際に留意すべき事項について検討する。なお、上記検討するに当たって、これまで構築してきた現行の鉱物モデル（鉱物リスト、密度等）についての整理も行う。

2.3.2 鉱物モデル

(1) 鉱物モデルの定義

人工バリアとして使用されるベントナイト系材料の長期性能評価は、物質移行とそれに伴う鉱物変質を評価する地球化学計算によって行われる。これらの計算では、初期状態を設定することで実験室の時間スケールでは得られない長期間にわたる鉱物の変質を解析することができる。図 2.3-1 にベントナイト系材料の性能評価における鉱物モデルの位置付けを示す。鉱物モデルとは、鉱物リスト、鉱物密度データ、反応の種類をまとめたものであり、地球化学計算を行う上で必要な情報である。

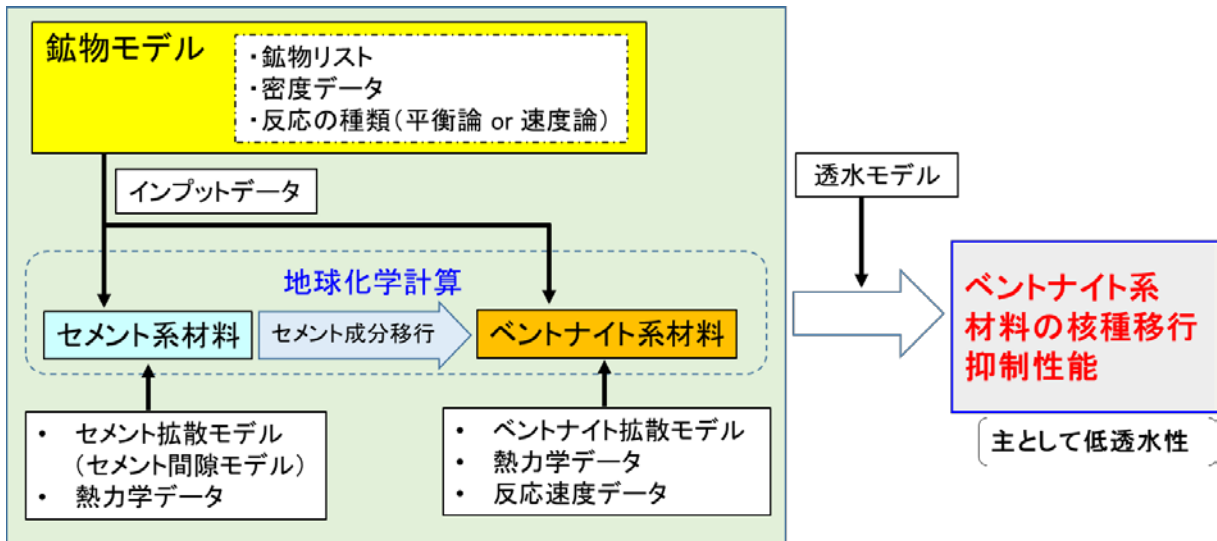


図 2.3-1 ベントナイト系材料の性能評価における鉱物モデルの位置付け

本報告書では、「鉱物モデル」を以下の3つを取りまとめたものと定義する。

① 鉱物リスト

熱力学データベース中の固相のうち、計算に寄与する鉱物を選定し、リスト化したもの。地球化学計算では、選定した鉱物に対してのみ、溶解・生成の計算が実行される。現行の鉱物モデルの設定については2.3.2(2)参照。

② 密度

選定した鉱物の真密度データ。溶解・生成反応前後の固相体積、間隙率を計算するために必要となる。現行の鉱物モデルでは、文献調査により必要データを整理している。

③ 反応の種類

選定した鉱物の溶解・生成反応が平衡論又は速度論のいずれかで進行するかを決定する。現行の鉱物モデルでは、実現象との整合性を踏まえ、Montmorillonite及びQuartzの反応を速度論で扱い、その他の鉱物の溶解・生成反応に対しては熱力学データを用い、平衡論で扱っている。

また、地球化学計算では、熱力学データや反応速度データも必要となる。特に、反応速度データについては、ベントナイト圧縮体の変質試験結果から得られたMontmorilloniteの溶解速度式(経験式)、既往文献に基づいたQuartzの溶解速度式等を設定することができる(表2.3-1)。

表 2.3-1 地球化学計算に使用する鉱物モデル、熱力学データ/反応速度データの例

鉱物モデル			熱力学データ/反応速度データ		
鉱物リスト	密度 (g/cm ³)	反応の 種類	反応式/溶解速度式	平衡定数 (log K)	ΔH (kJ/mol)
Montmorillonite	2.73	速度論	$R_A = 3500(a_{OH^-})^{1.4} \cdot \exp(-51000/RT)$	-	-
Quartz	2.65	速度論	$R_A = k \cdot A \cdot (a_{H^+})^n \cdot (1-Q/K)$	-	-
Chalcedony	2.65	平衡論	$SiO_2 = H_4SiO_4 - 2H_2O$	-3.999	7.875
Calcite	2.71	平衡論	$CaCO_3 = CO_3^{2-} + Ca^{2+}$	-8.48	-2.633
...

(2) 現行の鉱物リスト

現行の鉱物リストは以下の考え方に沿って、平成 21 年度⁽²⁶⁾までの委託事業にて整備されたベントナイト/セメント相互作用に係る鉱物リストに、平成 25 年度委託事業⁽²⁷⁾にてオーバーパックの腐食を考慮して鉄系鉱物を加えて整備したものである (表 2.3-2)。

- ・処分場の環境条件 (地下水組成、温度等) やセメント系材料及びベントナイト系材料の組成を踏まえ、実験で生成が確認された鉱物を設定
- ・ただし、データ不足等で鉱物が選定できない場合は同類の鉱物で代用

表 2.3-2 現行の鉱物リスト

鉱物名	選定根拠	鉱物名	選定根拠
Na-montmorillonite	ベントナイト系 材料 の初期鉱物として設定	Sepiolite	ベントナイト/ セメント反応の 二次鉱物として 設定
Chalcedony		Kaolinite (AS ₂ H ₂)	
Quartz		C-S-H (1.5)	
Calcite		C-S-H (1.3)	
Pyrite		C-S-H (1.1)	
Portlandite	セメント系材料の初期 鉱物として設定	C-S-H (1.0)	
C-S-H (1.8)		C-S-H (0.9)	
Monosulfate (AFm)		C-S-H (0.833)	
Hydrogarnet (C ₃ AH ₆)		C-S-H (0.6)	
Na ₂ O		C-S-H (0.4)	
K ₂ O		Katoite (C ₃ ASH ₄)	
Siderite	オーバーパック 腐食反 応生成物として設定	Pyrophyllite (AS ₄ H)	
Magnetite		Analcime	
Iron(II) hydroxide		Laumontite	
Chukanovite		Gypsum	
Goethite		Ettringite (AFt)	
Melanterite		Friedel's salt	
Berthierine		Brucite	
Gleenalite		Gibbsite	
		Hydrotalcite (HT)	

現行の鉱物リストは、地球化学計算を実施し、室内実験での短期的現象及び長期的な天然事象（主にモンモリロナイトの溶解量）との整合性により検証がなされてきた。しかしながら、現行の鉱物リストでは設定していないが、処分場環境で生成する可能性のある鉱物が存在する。また、中深度処分におけるベントナイト系材料の性能評価では、設定する二次鉱物が当該バリア性能（低透水性）に与える影響を把握しておくことが、二次鉱物設定の妥当性を判断する上で重要な知見となる。そこで、現行の鉱物リストにおいて選定された二次鉱物について、国内外の機関等との比較を行うことに加え、平成 22 年（2010 年）以降の最新知見の取込みを行うことにより、中深度処分の観点から設定の妥当性を改めて確認することとした。

2.3.3 既往知見の整理

本項では、文献調査により、考慮を必要とする可能性がある鉱物を網羅的に抽出することを目的として、(1)国内外の機関において考慮されている鉱物、(2)室内試験、天然事例及び人工類似物に係る研究の最新知見の調査を行った。

(1) 国内外で考慮されている鉱物リスト

ベントナイト系材料及びセメント系材料の相互作用により生成する可能性のある鉱物について、国内外の機関等で設定された鉱物モデルを調査し、それらで設定されている鉱物リストと現行の鉱物リストの比較を行った。調査対象とした機関等は以下のとおりである。

- ・ 日本：小田ほか（2013）⁽²⁸⁾、原子力環境整備促進・資金管理センター⁽²⁹⁾
- ・ スウェーデン：SKB⁽³⁰⁾
- ・ フィンランド：POSIVA⁽³¹⁾
- ・ フランス：BRGM 及び ANDRA⁽³²⁾
- ・ スイス：NAGRA⁽³³⁾

それぞれの機関等が、どのような廃棄物埋設地の条件を基にした鉱物モデルであるかについて、以下に示す。

(i) 小田ほか（2013）

- ・ 想定処分施設：TRU 廃棄物の地層処分
- ・ 人工バリア等の構成：緩衝材（ベントナイト及び砂の混合物）がセメント系材料である構造躯体及びトンネル支保に挟まれている
- ・ 速度式を適用している鉱物：Montmorillonite、Quartz、Chalcedony
- ・ 間隙率の変化の考慮：変質に伴う間隙の変化を拡散係数に反映
- ・ 解析体系：1次元

(ii) 原子力環境整備促進・資金管理センター

- ・ 想定処分施設：TRU 廃棄物の地層処分
- ・ 人工バリア等の構成：廃棄物埋設地の円形断面であり、内側から廃棄体、緩衝材、支保工、岩
- ・ 速度式を適用している鉱物：Montmorillonite、ゼオライト（Heulandite 及び Phillipsite）は核形成待ち時間を考慮
- ・ 間隙率の変化の考慮：変質に伴う間隙の変化を拡散係数に反映
- ・ 解析体系：2次元

(iii) SKB

- ・ 想定処分施設：SFR silo（低・中レベル放射性廃棄物対象施設）
- ・ 人工バリア等の構成：ベントナイトがセメント系材料に挟まれている
- ・ 速度式を適用している鉱物：Montmorillonite
- ・ 間隙率の変化の考慮：なし

- ・解析体系：1次元

(iv) POSIVA

- ・想定処分施設：地層処分施設
- ・人工バリア等の構成：ベントナイトにアルカリ性溶液（pH12.17、11.60、9.70の3種類）が接触している
- ・速度式を適用している鉱物：Montmorillonite、Albite、Quartz、Muscovite、Calcite、Brucite、Gibbsite、K-feldspar、Dolomite、Illite、Chalcedony、Analcime、Heulandite、Phillipsite
- ・間隙率の変化の考慮：変質に伴う間隙の変化を拡散係数に反映
- ・解析体系：1次元

(v) BRGM 及び ANDRA

- ・想定処分施設：地層処分施設
- ・人工バリア等の構成：コンクリートと粘土層（Callovo-Oxfordian）が接触している
- ・速度式を適用している鉱物：Montmorillonite、Illite、Daphnite 14A、Quartz、Celestite
- ・間隙率の変化の考慮：変質に伴う間隙の変化を拡散係数に反映
- ・解析体系：1次元

(vi) NAGRA

- ・想定処分施設：地層処分施設
- ・人工バリア等の構成：低 pH コンクリートの一方にベントナイトが接触し、もう一方に粘土層（Opalinus Clay）が接触している
- ・速度式を適用している鉱物：なし
- ・間隙率の変化の考慮：変質に伴う間隙の変化を拡散係数に反映
- ・解析体系：1次元

国内外の機関等で設定している鉱物について、ベントナイト又は粘土層に含まれる初期鉱物（以下「ベントナイト初期鉱物」という。）、セメント系材料の初期鉱物（以下「セメント初期鉱物」という。）及び二次鉱物に分類し、比較を行ったものを表 2.3-3 に示す。表 2.3-3 の中の小田ほかの列のうち、Illite 欄にある※印、ゼオライトの分類の欄にある※※印及び C-S-H 型の分類の欄にある※※※印が付されているものは、平衡計算によって生成する二次鉱物が決定できないため、生成する鉱物について場合分けした解析が実施されたものである。具体的には、C-S-H 型の鉱物に関しては、「C-S-H のみを二次鉱物として設定するケース」や「より熱力学的に安定な鉱物である Tobermorite、Jennite 及び Afwillite を二次鉱物として設定するケース」といった場合分けが行われている。

表 2.3-3 国内外の機関等で設定している鉱物の比較 (1/4)

(■ : ベントナイト初期鉱物、▲ : セメント初期鉱物、● : 二次鉱物)

(※、※※又は※※※は場合分けがあるものを表す。)

分類	鉱物名	現行	小田 ほか	原環 セ	SKB	POSIVA	BRGM ANDRA	NAGRA
スメクタイト	Montmorillonite ($\text{Na}_{0.34}\text{Mg}_{0.34}\text{Al}_{1.66}\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)	■	■	■	■	■	■	■
	Beidellite ($\text{Na}_{0.34}\text{Al}_{2.34}\text{Si}_{3.66}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)						●	
	Saponite ($\text{Na}_{0.33}\text{Mg}_3\text{Al}_{0.33}\text{Si}_{3.67}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)				■		●	
ケイ酸塩	Illite ($\text{K}_{0.85}\text{Al}_{2.85}\text{Si}_{3.15}\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)		●※	●	■	●	■	▲
	Muscovite ($\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3)\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)					■		
	Kaolinite ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$)	●			●			■
	Pyrophyllite ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$)	●						
Mg ケイ酸塩	Clinochlore ($\text{Mg}_5\text{Al}(\text{AlSi}_3)\text{O}_{10}(\text{OH})_8$)						●	
	Sepiolite ($\text{Mg}_4\text{Si}_6\text{O}_{15}(\text{OH})_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)	●	●					
二酸化ケイ素	Quartz (SiO_2)	■			■▲	■	■	■
	Amorphous silica (SiO_2)	■	■	■	●	■	●	■
長石	K-Feldspar (KAlSi_3O_8)		●	●		●		■
	Albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$)				▲	■		

表 2.3-3 国内外の機関等で設定している鉱物の比較 (2/4)

分類	鉱物名	現行	小田 ほか	原環 セ	SKB	POSIVA	BRGM ANDRA	NAGRA
水酸化物	Portlandite (Ca(OH) ₂)	▲	▲	▲	▲		▲	
	Brucite (Mg(OH) ₂)	●	▲	▲	●	●		
	Gibbsite (Al(OH) ₃)	●			●	●		▲
炭酸塩	Calcite (CaCO ₃)	■	■	■	■	■	■▲	■▲
	Dolomite (CaMg(CO ₃) ₂)		●	●	●	●	■	
ゼオライト	Phillipsite (NaAlSi ₃ O ₈ ·3H ₂ O)		●***	●	■	●	●	●
	Heulandite (Na _{2.14} Al _{2.14} Si _{6.86} O ₁₈ ·6.17H ₂ O)		●***	●	●	●		
	Clinoptilolite (Na _{1.1} (Si _{4.9} Al _{1.1})O ₁₂ ·3.5H ₂ O)		●***	●				
	Analcime (Na _{0.99} Al _{0.99} Si _{2.01} O ₆ ·H ₂ O)	●	●***	●	●	●		
	Laumontite (Ca(Al ₂ Si ₄)O ₁₂ ·4H ₂ O)	●	●***					
	Chabazite (Ca(Al ₂ Si ₄)O ₁₂ ·6H ₂ O)						●	

表 2.3-3 国内外の機関等で設定している鉱物の比較 (3/4)

		現行	小田 ほか	原環 セ	SKB	POSIVA	BRGM ANDRA	NAGRA
C-S-H 型	C-S-H ($x\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$)	▲●	▲****	▲	▲		▲	●
	Tobermorite ($\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{H}_{21}\text{O}_{27.5}$)		●****		●	●	●	▲
	Jennite ($\text{Ca}_9\text{Si}_6\text{H}_{22}\text{O}_{32}$)		●****					▲
	Afwillite ($\text{Ca}_3\text{Si}_2\text{O}_4(\text{OH})_6$)		●****					
	Gyrolite ($\text{Ca}_2\text{Si}_3\text{O}_{7.5}(\text{OH}):2\text{H}_2\text{O}$)				●	●		
C-A-S-H 型	Katoite ($\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)(\text{OH})_8$)	●	●	●	●	●	▲	
水和物	Hydrogarnet ($3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$)	▲	▲	●	▲	●		
	Ettringite ($\text{Ca}_6\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{12}:26\text{H}_2\text{O}$)	●	▲	▲	▲	●	▲	▲
	Monosulfate ($\text{Ca}_4\text{Al}_2(\text{SO}_4)(\text{OH})_{12}(\text{H}_2\text{O})_6$)	▲	●		●	●		
	Hydrotalcite ($\text{Mg}_4\text{Al}_2\text{O}_7:10\text{H}_2\text{O}$)	●	●	●	▲	●	▲	▲
	Friedel's salt ($\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{Cl}_2\text{O}_6:10\text{H}_2\text{O}$)	●	●	●	▲	●		
	Straetlingite (Gehlenite hydrate) ($\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_2(\text{OH})_{10}:2.5\text{H}_2\text{O}$)			●		●		
	Monocarboaluminate ($\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{CO}_9:10.68\text{H}_2\text{O}$)					●		
	C4AH13 ($4\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 13\text{H}_2\text{O}$)			●				
	C4AH19 ($4\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 19\text{H}_2\text{O}$)			●				

表 2.3-3 国内外の機関等で設定している鉱物の比較 (4/4)

		現行	小田 ほか	原環 セ	SKB	POSIVA	BRGM ANDRA	NAGRA
硫酸塩	Gypsum (CaSO ₄ :2H ₂ O)	●			■	■		●
	Celestite (SrSO ₄)						■	▲
	Barite (BaSO ₄)							▲
酸化物	Na ₂ O (Na ₂ O)	▲	▲	▲				
	K ₂ O (K ₂ O)	▲	▲	▲				

(2) 室内試験、天然事例及び人工類似物に係る研究の最新知見

ベントナイト系材料及びセメント系材料の相互作用に関連する研究について、文献調査を行った。文献調査は、表 2.3-4 に示す条件等に従って行った。

表 2.3-4 文献調査の条件等

文献データベース	INIS(International Nuclear Information System)、Science Direct 等
キーワード	ベントナイトに類する語 (Bentonite、Montmorillonite、Clay 等) 二次鉱物に類する語 (Secondary mineral、C-S-H、M-S-H 等) セメント系材料に類する語 (Cement、Concrete、Alkaline 等) 変質に類する語 (Alteration、Dissolution、Precipitation 等) 天然事例・人工類似物に類する語 (Natural analogue、in situ 等) 評価に類する語 (Long-term、Model 等) 性能に類する語 (Hydraulic、Clogging 等)
文献登録年	2010 年以降の文献を主な調査対象とするが、必要に応じてこれ以前の文献も調査対象とする。
言語	英語及び日本語

表 2.3-4 の条件等に従って得た文献を調査した結果、二次鉱物として生成が確認されている鉱物は、おおむね 2.3.3 (1) で示した国内外の機関等で設定されている鉱物に含まれていた。国内外の機関等で設定されていないが、室内実験等で生成が確認されている二次鉱物は、C-A-S-H ($x\text{CaO} \cdot y\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2 \cdot z\text{H}_2\text{O}$)、M-S-H ($x\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$) 及び Merlinoite である。

2.3.3 (1) 及び 2.3.3 (2) で抽出した二次鉱物を表 2.3-5 に示す。ここで、表 2.3-3 中の Montmorillonite、Quartz、Amorphous silica、Portlandite 及び Calcite 並びに海外の機関でベントナイト初期鉱物又はセメント初期鉱物として設定されている Muscovite 及び Albite は初期鉱物と判断し、抽出した二次鉱物には含めていない。また、Celestite 及び Barite については、それぞれ Sr の硫酸塩、Ba の硫酸塩であり、埋設する廃棄物、セメント系材料、ベントナイト系材料及び地下水中には Sr イオン及び Ba イオンが多量に含まれることは想定されないため、これらの鉱物が生成する可能性は低いと考え、抽出した二次鉱物には含めていない。

なお、文献調査結果の概要は Appendix I-A に記載する。

表 2.3-5 抽出した二次鉱物

分類	鉱物名	分類	鉱物名	分類	鉱物名
スメクタイト	Beidellite	C-S-H型	C-S-H	ゼオライト	Phillipsite
	Saponite		Tobermorite		Heulandite
ケイ酸塩	Illite		Jennite		Clinoptilolite
	Kaolinite		Afwillite		Analcime
	Pyrophyllite		Gyrolite		Laumontite
長石	K-feldspar	水和物	C4AH13		Chabazite
水酸化物	Brucite		C4AH19		Merlinoite
	Gibbsite		Ettringite	硫酸塩	Gypsum
炭酸塩	Dolomite		Hydrotalcite		
Mgケイ酸塩	Clinochlore		Friedel's salt		
	Sepiolite		Stratlingite		
	M-S-H		Monocarboaluminate		
C-A-S-H型	Katoite		Hydrogarnet		
	C-A-S-H		Monosulfate		

2.3.4 鉱物リストに係る検討

前項において抽出した鉱物については、地層処分を対象にしているもの、実験や天然において生成が確認されていないものも含まれている。そのため、我が国の中深度処分に対応した二次鉱物設定とするためには、更なる検討が必要である。そこで本項では、中深度処分環境を想定し、鉱物リストに「設定しない鉱物」、「設定する鉱物」、「計算によって影響を検討する鉱物」に分類を行う。

(1) 二次鉱物の分類に係るフロー

2.3.3 項で抽出した二次鉱物の全てを地球化学計算に設定した場合、実際には中深度処分環境において生成し得ない鉱物も計算上生成してしまう可能性がある。そこで、中深度処分を想定した環境において、二次鉱物として生成し得ない鉱物をあらかじめ除くため、図 2.3-2 に示すフローに従って二次鉱物の分類を行った。しかしながら、中深度処分環境において生成し得ると考えられる二次鉱物の中には、構造や組成が類似した鉱物が存在し、生成種が決定できない鉱物群が存在する。これは、鉱物ごとに生成速度が異なることが原因であり、例えば、C-S-H ゲルと類似の組成を持つ Tobermorite、Jennite、Afwillite については、熱力学的には C-S-H ゲルよりも安定であるものの、生成速度について定量的な評価がないため、平衡計算によって一意に生成種を絞り込むことができない。そこで、これらの平衡計算によって生成が決定できない鉱物群は、地球化学計算により、鉱物設定が透水性に与える影響について検討する鉱物（以下「影響検討鉱物」という。）として分類を行った。また、既往の検討によって生成しないと考えられる二次鉱物は Appendix I-B に示す。

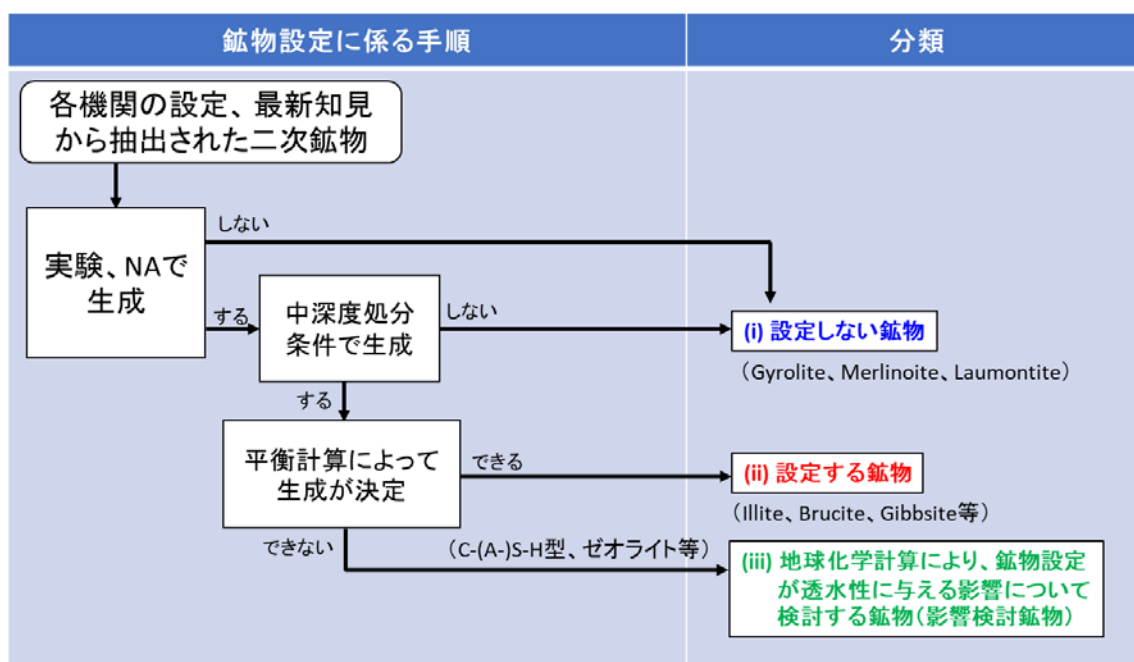


図 2.3-2 二次鉱物の分類に係るフロー

(2) 二次鉱物の分類に係る知見の整理

表 2.3-5 で抽出した二次鉱物について、中深度処分を想定し、二次鉱物を分類するための知見の整理を行った。これに加え、現行の鉱物リストにおいて選定している二次鉱物の妥当性について検討した。この際、日本の地表面温度が 5~35℃、温度勾配が 2~3℃/100 m であるとし、中深度処分の廃棄物埋設地が設置される温度条件は 40℃以下であることを前提とした。

【スメクタイト】

Beidellite, Saponite

高 pH 溶液と Montmorillonite が反応することで Montmorillonite の四面体シートの層電荷が増加するバイデライト化が起こることが示されている^{(34),(35)}。エチレングリコール処理を行った XRD 測定の結果から、バイデライト化した場合であっても、ベントナイトの透水性に起因する膨潤性の低下は認められていない⁽³⁵⁾。

Saponite については、ベントナイトの高 pH 変質によって生成し得る鉱物として選定されているものの、実験的な根拠は示されていない⁽³⁶⁾。一方で、ベントナイトの変質によりスメクタイトと考えられる 2:1 型の 3 八面体型層状ケイ酸塩（又は talc-like mineral）の生成が認められたと報告しているが、具体的な組成等は明らかにされていない⁽³⁷⁾。

変質評価の考え方として、小田ほか（2005）⁽³⁸⁾では、「スメクタイト族の鉱物種間の変化は緩衝材の性能を著しく劣化させるとは考え難い。よって、サポナイトなどモンモリロナイト以外のスメクタイトは、本検討においては二次鉱物として設定しないこととする。」と述

べられている。

以上のことから、Montmorillonite から他のスメクタイト族への変質の可能性はあるものの、変質に伴う性能への影響が小さいと考えられることから、Montmorillonite の変質鉱物として、Beidellite 及び Saponite を設定する必要はないと考える。

【ケイ酸塩】

Illite

Eberl et al. (1993)⁽³⁹⁾では、KOH 溶液とスメクタイトが反応することにより、Illite の生成を示唆している。しかしながら、Illite の生成が示唆されている 35°C の温度で行った試験については、同様の試験を NaOH 溶液でも行っており、両者の膨潤性 (Expandability (%)) に顕著な差は認められない (図 2.3-3)。一方、60°C の温度で行った試験については、KOH 溶液中のみ行っており、NaOH 溶液で行ったものとの比較はできないが、温度 60°C、KOH 3.0 M の条件では非膨潤層の生成が認められたとしている (図 2.3-4)。グリコール処理をしたスメクタイトの底面間隔については、層間に入り込むグリコール層が 0 層で 10 Å、1 層で 14 Å、2 層で 18 Å との報告があり⁽⁴⁰⁾、それぞれの層に対応する底面間隔が測定されたと推定される。

Eberl et al. (1993)⁽³⁹⁾と同様の実験を日本原子力研究開発機構 (2012、2013、2014)^{(41),(42),(43)}でも行われている。日本原子力研究開発機構 (2012、2013、2014)^{(41),(42),(43)}では、使用する試料をクニピア P (精製 Na 型モンモリロナイト) とし、変質後の分析については XRD 測定のほか、アルキルアンモニウム法⁽⁴⁴⁾による層電荷の算出及び AFM 観察を実施している。XRD 測定データより、Watanabe (1988)⁽⁴⁵⁾のイライト/スメクタイト混合層構造判定図に基づきイライト化率を算出しており、KOH 濃度が高く、より温度が高い条件ではイライト化率が高くなっていることが示された (図 2.3-5)。アルキルアンモニウム法による層電荷の算出結果については、反応から 118 日後であっても未反応のものよりもわずかに高い値を示すという結果であり、層電荷の顕著な変化は認められなかった。しかし、これらの結果は X 線回折のピーク位置を読み取っているため、変質が進んだ試料については、回折ピーク位置の読み取りが難しくなっており、読み取り値の信頼性は低いと考えられることが問題点として挙げられている⁽⁴¹⁾。そこで、イライト化した場合、Montmorillonite が有する膨潤性が失われ、水中で分散させた場合には (001) 方向の厚み (積層数) が増加すると考えられることから、AFM による粒子の積層枚数の評価を行っている。AFM による測定高さが 1 ~ 2 nm にあるものは単層であり、それ以上のものは積層したものと判断すると、3.0 M KOH で反応させた試料は、積層した粒子の割合が増加しており、イライト化が進行したものと推察されたとしている (図 2.3-6)。

また、日本原子力研究開発機構 (2014)⁽⁴³⁾では、Na 型ベントナイト (クニゲル V1) に対する KOH 溶液 (0.3 M 及び 3.0 M) の通水試験も行っている (通水期間は最大 60 日)。通水試験後試料について、XRD 測定及び AFM 観察によりイライト化を評価しており、両者の

結果からイライト化は確認されていない。このことから、固液比条件によってイライト化の進行が異なることが示された。

Montmorillonite のイライト化について、続成作用により Montmorillonite がイライト化する場合、イライト/スメクタイト混合層形成の初期段階で Montmorillonite の四面体シートの層電荷が増加する（バイデライト化）ことが明らかとなっており、Montmorillonite のバイデライト化は溶解-沈殿プロセスよりも固体状態での Si と Al の交換反応による可能性が高いことが示唆されている⁽⁴⁶⁾。高 pH 溶液と Montmorillonite の反応では、四面体シートの層電荷が増加することが報告されている⁽³⁴⁾。また、Montmorillonite の膨潤性は層電荷密度及び層電荷が発現する位置によって変化し、特に四面体シートの層電荷が大きいほど膨潤しないことが報告されている⁽⁴⁷⁾。しかしながら、日本原子力研究開発機構（2012）⁽¹⁶⁾では、反応前後で Montmorillonite の層電荷の増加が認められないことを示しており、高 pH の KOH 溶液との反応では、続成作用とは異なるイライト化が生じる可能性があるが、その詳細な変遷は不明である。

これらの結果から、K イオンが高濃度かつ高 pH 条件でイライト化の生成が認められていると判断することが可能である。一方、セメントから溶脱する K イオン濃度は、最大で 0.3 M 程度と想定される⁽⁴⁸⁾。KOH 濃度が 0.5 M 以下の条件におけるイライト化率は、反応開始から 270 日後であっても測定の変動範囲と考えられ、顕著なイライト化は認められないと判断できるが、処分環境のような長期間にわたる反応の場合にイライト化を否定することはできないため、二次鉱物として選定する必要があると考える。

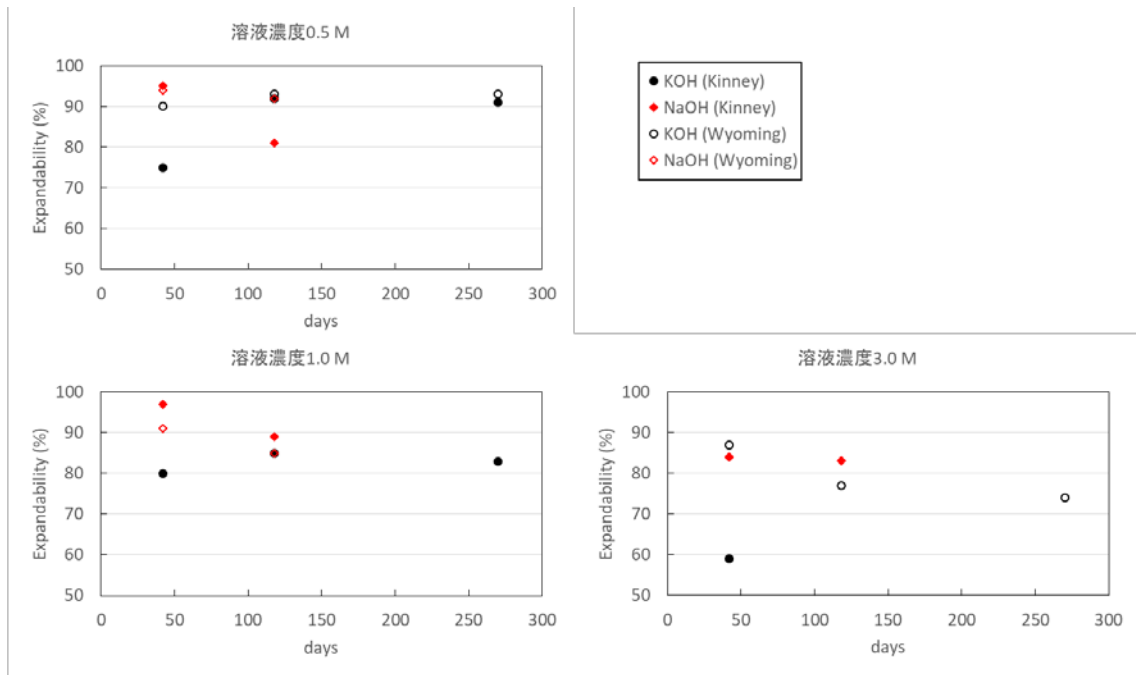


図 2.3-3 溶液濃度 0.5~3.0 M の KOH 溶液及び NaOH 溶液へ浸漬した Kinney bentonite ($0.1 \mu\text{m}$) 及び Wyoming bentonite ($0.1 \mu\text{m}$) の XRD 測定より算出した膨潤性 (Expandability (%)) の比較 (Eberl et al. (1993)⁽³⁹⁾の温度 35°C の試験結果を図化)

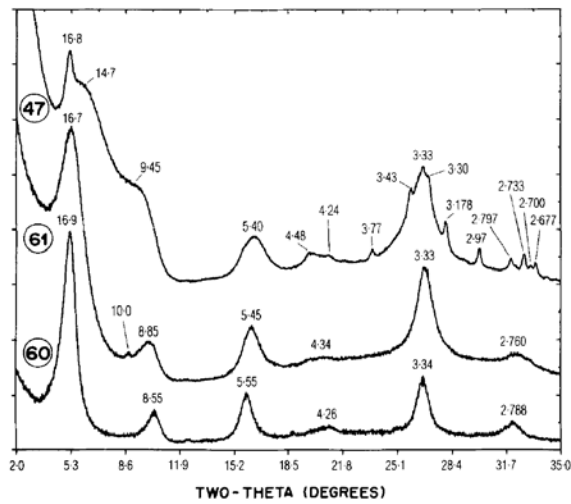


図 2.3-4 ④が 60°C、3.0 M の KOH 溶液、⑥が 0.5 M の KOH 溶液、⑥が 1.0 M の KOH 溶液に浸漬した結果 (Eberl et al. (1993)⁽³⁹⁾の Fig.4)

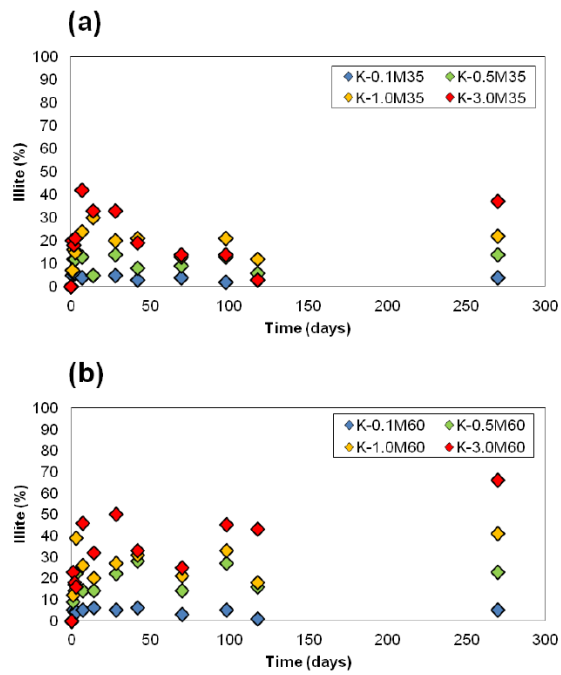


図 2.3-5 イライト化率の経時変化 ((a) 反応温度 35°C、(b) 反応温度 60°C) (42)

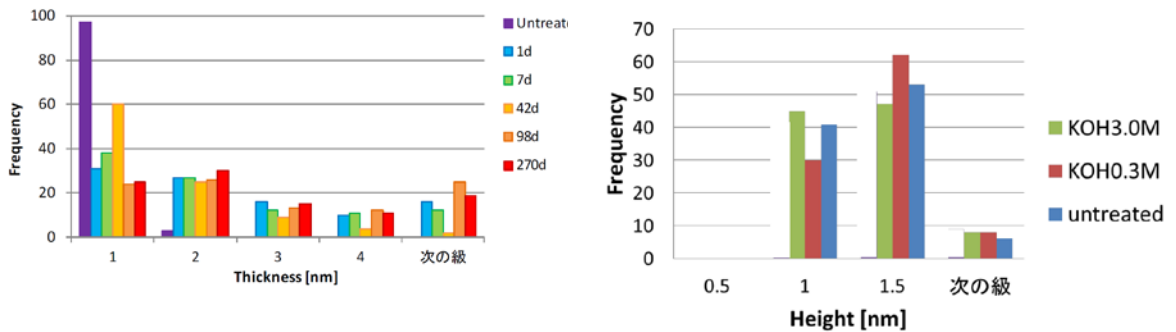


図 2.3-6 AFM 観察による粒子の積層方向の高さ分布、左図：反応実験前後におけるクニピア P の積層方向の高さの分布 (3.0M、60°C、固液比 0.25 g/50 ml)、右図：KOH 通水実験前後における粒子の (001) 方向高さ (3.0M、60°C、乾燥密度 0.8 Mg/m³) (43)

Kaolinite、Pyrophyllite

Kaolinite 及び Pyrophyllite については、室内実験及びナチュラルアナログ研究の両者において、ベントナイトの高アルカリ性領域での変質鉱物としての生成は確認されていない。これらの鉱物が、現行の鉱物リストにおいて二次鉱物として選定されている理由は、セメントの浸漬試験等の液相組成を再現するために、計算上、二次鉱物として採用されたものと考えられる⁽⁴⁹⁾。しかしながら、室内実験においても X 線回折等で検出できない微量の生成や非結晶性のものが生成していた可能性を否定できない。以上より、ベントナイトの変質鉱物として生成する可能性は低いと考えられるが、セメント中の二次鉱物として生成することは否定できないことから、二次鉱物として選定する。

【Mg ケイ酸塩】

Clinochlore、Sepiolite、M-S-H

Mg イオンを構造に含む鉱物である Sepiolite については、塩湖等の天然に広く存在する鉱物として知られている⁽⁵⁰⁾。合成実験では、pH 9 程度の溶液からの合成が報告されている^{(51)、(52)}。しかしながら、pH が 9.5 以上の条件では Sepiolite の生成は認められず、Trioctahedral smectite が生成するという報告がある⁽⁵³⁾。

Mg ケイ酸塩鉱物として、K-Na-OH 溶液によるベントナイト（層間陽イオンに Mg を含む。）の拡散試験により、Chlorite-like 相の生成が報告されている⁽⁵⁴⁾。また、同様のベントナイトに OPC を接触させた試験においても、Brucite の単層がスメクタイトの層間に入った Mg-silicate の生成が認められたと報告している⁽⁵⁷⁾。これらの試験で使用しているベントナイトは層間陽イオンに Mg を含むものであり、ベントナイト中の Mg が豊富な状態といえる。一方、現在、日本で使用が検討されているベントナイトは層間陽イオンが Na 又は Ca イオンのものである。このようなベントナイトに含まれる Mg イオンは、Montmorillonite の八面体シートに Al イオンと同形置換することで含まれているが、高 pH 環境で Mg イオンを含む二次鉱物が生成したとの報告はない。しかしながら、処分場へは地下水に含まれる Mg イオンが供給される可能性があり、Mg ケイ酸塩鉱物の生成を否定することはできない。

M-S-H については、高 pH 地下水と碎屑性堆積物との反応により、非晶質な M-S-H の生成が天然で認められたとの報告もある⁽⁵⁵⁾。また、Bernard et al. (2018)⁽⁵⁶⁾等で合成実験が行われており、M-S-H 中に Ca イオンが取り込まれる (M-C-S-H) ことを報告している。また、M-S-H (M-C-S-H) の熱力学データも報告されており、C-S-H よりも低い pH 領域でも M-S-H が生成することを報告している (図 2.3-7)。このほか、粉末状の MgO にシリカが溶存しているアルカリ性溶液を通水することで M-S-H が生成することが報告されており⁽⁵⁷⁾、溶液中に Mg イオン及びシリカが存在する場合には、比較的容易に M-S-H が生成すると考えられる。

また、Fe、Mg に富む高アルカリ環境では、ゼオライトの生成よりも M-S-H や F-S-H 等が生成し、その後 Saponite 等の 3 八面体型のスメクタイトになることがナチュラルアナログ研究で示唆されている⁽²⁹⁾。しかしながら、どのような条件であれば M-S-H 等からスメクタイトへ変遷するかは明らかになっていない。

以上のことから、ベントナイトの変質に伴う二次鉱物として Clinochlore、Sepiolite、M-S-H のいずれも生成する可能性があるかと判断するが、どの鉱物が生成するかは明らかではないため、地球化学計算により、当該鉱物を設定した際の影響度を評価することとする。なお、M-S-H からスメクタイトへの変遷については、メカニズムが不明であるため、考慮しない。

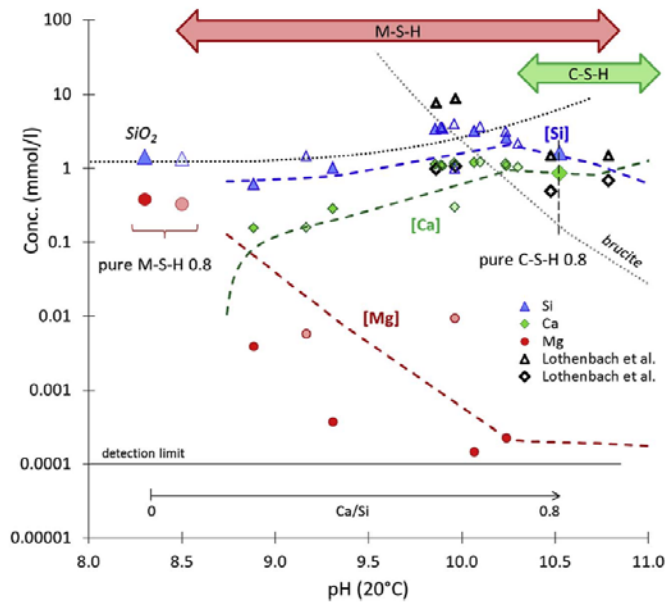


Fig. 1. Measured silicon (triangles), magnesium (circles), and calcium (diamonds) concentrations at 20 °C at 1 year (lighter symbols) and 2 years (full symbols) as a function of pH. Empty symbols are from Lothenbach et al. (2015). The solubility of M-S-H, C-S-H (dashed lines), brucite and amorphous silica (dotted lines) were calculated from the thermodynamic data (solid solutions for M-S-H and C-S-H) detailed in Table 2 without considering the formation of mixed M-(C)-S-H phase.

図 2.3- 7 Si、Mg、Ca 濃度と pH の関係並びに M-S-H、C-S-H、ブルーサイト及びアモルファスシリカの溶解度⁽⁵⁶⁾

【長石】

K-feldspar

K-feldspar については、ゼオライトを出発物質として変質することが天然事例で確認されていることが報告されており⁽³⁸⁾、安定相図からも条件を整えばゼオライトから K-feldspar に変質することが推定できる (図 2.3- 8)。また、100°C以下ではカリ長石化が起こることが示されている⁽⁵⁸⁾、⁽⁵⁹⁾。

以上のことから、K-feldspar を二次鉱物として選定する。

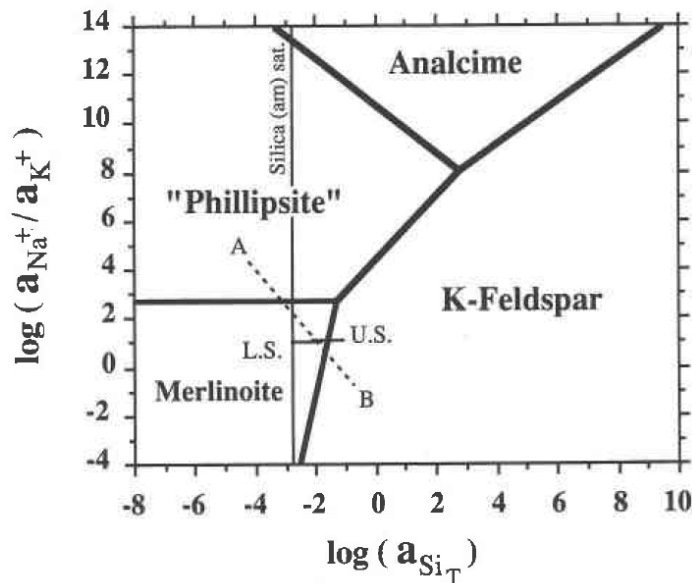


Fig. 3. Activity ratio diagram at 25 °C and 1 bar, showing stability fields for P-9(KNa) merlinoite, "phillipsite" [approximated by ΔG° for P-9(NaK) merlinoite], analcime, and potassian feldspar. Activity of water was taken to be 0.754 and pH = 9.5. See text for explanation of upper salt (U.S.) and lower salt (L.S.) brines.

図 2.3-8 ゼオライト及び K-feldspar の安定相図⁽⁶⁰⁾

【水酸化物】

Brucite、Gibbsite

コンクリート供試体を模擬海水に浸漬する試験において、Brucite の生成が認められている⁽⁶¹⁾。また、ベントナイトの変質試験においても Brucite 及び Gibbsite の生成が示唆されている⁽⁶²⁾ことから、二次鉱物として選定する。

【炭酸塩】

Dolomite

天然では続成作用により生成したと考えられるものが広く存在しているものの、常温常圧下では実験的に短時間で生成することは困難とされている⁽⁶³⁾。一方、60°Cという比較的低温条件であっても、炭酸カルシウムである Alagonite を CaCl_2 及び MgCl_2 の飽和溶液に7年間浸漬した実験において、Dolomite の生成が報告されている⁽⁶⁴⁾。このように比較的低温で常圧条件であっても、Mg イオンが存在する条件で長期間反応することができれば、炭酸カルシウムから Dolomite に変質することが否定できないため、Dolomite を二次鉱物として選定する。

【ゼオライト】

Phillipsite、Heulandite、Clinoptilolite、Analcime、Laumontite、Chabazite、Merlinoite

Phillipsite 及び Analcime はベントナイトの高 pH 溶液への浸漬によって生成することが報告されている^{(34), (65), (66), (67), (68), (69)}。Phillipsite と Analcime の生成の差異については、ベントナイト中の間隙

水の Si 濃度によって生じるという報告がある⁽³⁴⁾。Vigil de la Villa et al. (2001)⁽⁶⁷⁾では、図 2.3-9 のような相平衡ダイアグラムを示しており、Si 濃度だけではなく、Na/Ca 比及び温度によって生成がコントロールされていることが示されている。

Heulandite は小田ほか (2005)⁽³⁸⁾において生成する可能性のある鉱物として選定されており、図 2.3-9 の相平衡ダイアグラムからも Si 濃度が高く、Na/Ca 比が低い場合に生成すると考えられるが、実験的に生成が確認されていない。一方、ナチュラルアナログ研究では、アルカリ変質によるモンモリロナイトの溶解・沈殿反応によって Heulandite が生成したと報告しており、形成されるゼオライト種の差異は「原岩の鉱物組成・バルク組成とその反応時の地下水の組成、pH、温度および、滞留時間（接触時間）などに依存するものと考えられる。」と報告されている⁽⁷⁰⁾。特に、Savage et al. (2007)⁽⁷¹⁾では、溶液の Si/Al 比が小さい（Al 濃度が高い）場合は Analcime 及び Heulandite が形成しやすく、Si/Al 比が大きい（Al 濃度が低い）場合は Phillipsite が形成しやすいと指摘している。

Chabazite については、温度 120°C の KOH 溶液及び NaOH 溶液への Callovo-Oxfordian 粘土の浸漬によって生成が認められている⁽⁷²⁾が、100°C 以下の条件での Montmorillonite の変質で生成したという報告はない。一方、ケイ酸ナトリウムガラス（SiO₂-Al₂O₃-Na₂O-B₂O₃ で構成）を温度 50°C、75°C 及び 100°C の NaCl 溶液に浸漬することで、Chabazite-Analcime-Phillipsite の混合物が生成していることが報告されている⁽⁷³⁾。ただし、2.3.5 の地球化学計算で使用する熱力学データベースには、Ca 型 Chabazite (Ca(Al₂Si₄)O₁₂·6H₂O) のみが収録されており、これが室内実験で生成したかは定かではなく、交換性陽イオンとして Ca イオンの代わりに Na イオンや K イオンで構成されたものが生成した可能性もあることに留意が必要である。

深海底堆積物や堆積岩の埋没続成作用によって Analcime・Heulandite から Laumontite に変遷する可能性を指摘している⁽³⁸⁾が、ベントナイトのアルカリ変質によって Laumontite が生成することは確認されていない。なお、Laumontite は現行の鉱物リストで設定されているが、その設定根拠は「Na 成分が豊富にある場合の montmorillonite の二次鉱物は analcime であるが、本計算では試験溶液に Ca 成分が多いことから、analcime (NaAlSi₂O₆H₂O) の Na 成分と Ca 成分が置換することを想定し、laumontite (CaAl₂Si₄O₁₂·4H₂O) を設定した。」としており⁽⁷⁴⁾、その設定根拠は乏しい。また、Laumontite と Chabazite について、両者の組成は結晶水の数が違うのみで、骨格となる Si/Al 比は Si/Al = 2 と同一であり、熱力学的に Chabazite のほうが安定であるため、地球化学計算において Chabazite を設定すると、Laumontite は生成しないものと考えられる。

Merlinoite については、アルカリ塩湖で生成が認められる鉱物であり、その構造は Phillipsite と関連があり、よりカリウム (K) に富んだものである⁽⁷⁵⁾。溶液組成の K 濃度が高い場合に生成すると考えられ、その存在は Phillipsite の生成が支配的な状況下で付随的に Merlinoite が生成しているものと考えられるが、室内実験において 60°C 以下での生成は認められていない⁽⁶²⁾、⁽⁷⁶⁾。

このほか、ナチュラルアナログ研究において、Clinoptilolite が Montmorillonite の溶解-沈殿（結晶化）反応により生成されたものと解釈されている⁽⁷⁷⁾が、室内実験では Clinoptilolite が最も安定な相と考えられる溶液条件であっても Phillipsite の核形成が認められるといった報告があり、Montmorillonite のアルカリ変質によって生成することが実験的には確認されていないことから、Clinoptilolite と Phillipsite の生成速度に差があるものと考えられる⁽⁷⁸⁾。

以上より、Merlinoite については、Phillipsite と類似の構造であること、60°C 以下での生成が認められていないことから、二次鉱物として選定しない。また、Laumontite については、計算の都合上設定されていた鉱物であり、Chabazite を設定した場合に生成しないものであるため、二次鉱物として選定しない。他のゼオライトについては、室内実験から生成速度に差が見られるものの、長期的にはベントナイトの変質に伴う二次鉱物としていずれも生成する可能性が否定できないため、地球化学計算により、当該鉱物を設定した際の影響度を評価することとする。

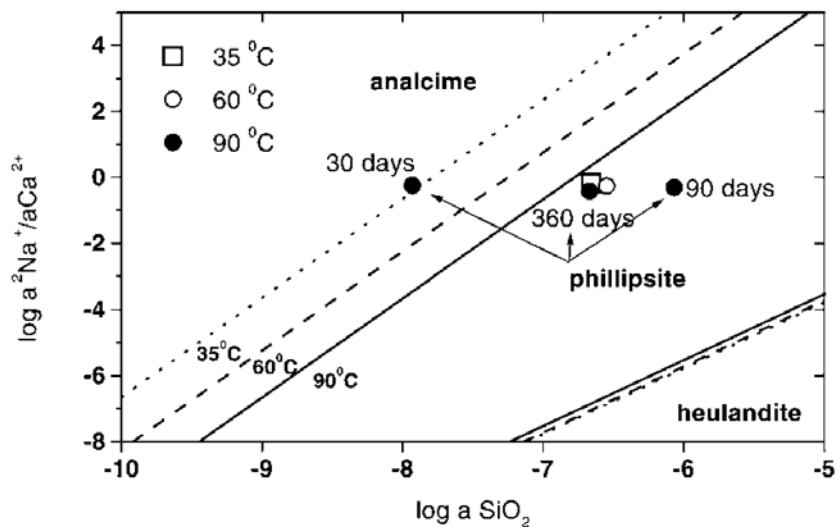


図 2.3-9 ゼオライトの安定相図⁽⁶⁷⁾

【C-S-H 型】

Tobermorite、Jennite

Tobermorite は 100°C 以下でも安定して存在することが示されている (図 2.3-10) が、短期間での合成には 100°C 以上の高温条件が必要であるが知られている^{(79), (80)}。ベントナイトと高 pH 溶液との反応により Tobermorite の生成が認められている研究もあるが、反応温度は 100°C を超えた場合に限られている⁽⁷²⁾。一方、50°C であっても長期的には C-S-H ゲルからの結晶化が報告されており、この結晶化に伴い Tobermorite 及び Jennite に起因する X 線回折のピークが認められている⁽²⁹⁾。一方で、セメント系材料のナチュラルアナログにおいて、数千年を超える長期にわたって C-S-H ゲルが存続していた例も報告されており^{(81), (82)}、C-S-H ゲルから Tobermorite 等への結晶化のメカニズムは明らかになっていない。これらのことから、長期的には C-S-H ゲルが存続する可能性、C-S-H ゲルから結晶化する可能性の両者が否定できないことから、地球化学計算により、当該鉱物を設定した際の影響度を評価することとする。

Afwillite

Afwillite の通常の合成には 100°C 以上の温度条件で行われている報告のほか⁽⁸³⁾、Ca(OH)₂ とシリカゲルの混合物に水を添加し、遊星ミルを用いて室温で粉砕する合成法により、Afwillite の生成が報告されている⁽⁸⁴⁾。

加速試験によって生成が報告されているため、ベントナイト/セメント界面においても条件によっては C-S-H ゲルからの結晶化による生成が否定できないことから、地球化学計算により、当該鉱物を設定した際の影響度を評価することとする。

Gyrolite

Gyrolite は、SKB 及び POSIVA では二次鉱物として設定されているものの、100°C 以上の高温で安定な鉱物 (図 2.3-10) であることが示されており、これ以下の温度での生成が報告されていないことから、二次鉱物として選定する必要はないと考える。

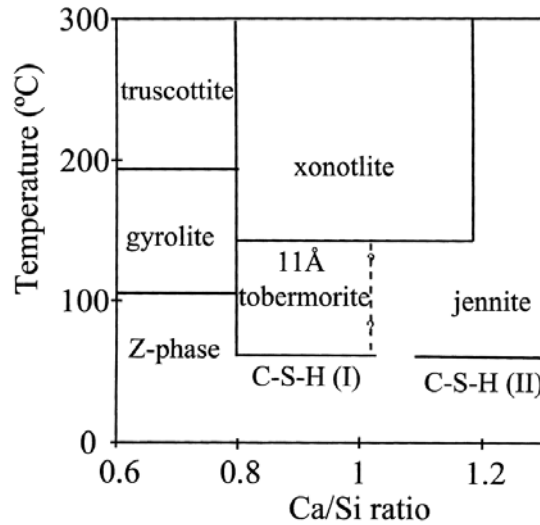


図 2.3-10 ケイ酸カルシウム水和物の存在形態⁽⁷⁹⁾

【C-A-S-H 型】

Katoite

120°CのCa(OH)₂溶液へのCallovo-Oxfordian粘土の浸漬により、生成が認められている⁽⁷²⁾。また、セメントのイオン交換水への浸漬試験(反応促進のため、イオン交換樹脂と共存)により、温度20°Cの条件下で生成が報告されている⁽⁸⁵⁾ことから、ベントナイトとの接触界面において、セメント由来の化学種が豊富な場合の生成が否定できない。

ベントナイトの変質鉱物として生成した報告は見当たらないものの、ベントナイト/セメント界面において生成する可能性が否定できないことから、Katoiteを二次鉱物として選定する。

C-A-S-H

ベントナイト又は粘土層とセメント系材料の接触により、生成が示唆されている^{(86),(87)}。結晶性の低いC-A-S-Hゲルが粘土層の空隙を閉塞していることが示唆されており⁽⁸⁶⁾、核種移行抑制性能の観点からも重要な鉱物と考えられる。しかしながら、地球化学計算を行うための熱力学データベースについては、ベントナイトの変質に対して検証された報告はない。したがって、地球化学計算により、これまでに使用してきたC-S-Hゲルを設定した場合との比較を行い、当該鉱物を設定した際の影響度を評価することとする。

【水和物】

Hydrogarnet、Monosulfate

Hydrogarnet及びMonosulfateは、現行の鉱物リストではセメント初期鉱物として設定しているが、他の機関等では初期鉱物ではなく、二次鉱物に設定されている場合もある。実験的には、セメントの水和反応により生成が認められており^{(88),(89)}、セメント初期鉱物として設定しない場合は二次鉱物として選定する必要がある。

Ettringite、Friedel's salt

コンクリート供試体を模擬海水に浸漬する試験において、Ettringite及びFriedel's saltの生成が認められている⁽⁶¹⁾。純水への浸漬では認められていないことから、溶液成分にClイオン等の生成に必

要なイオンが存在すれば、生成すると考えられ、ベントナイトとセメント系材料の界面において生成する可能性があることから、二次鉱物として選定する。

Hydrotalcite

OPC の浸漬試験から Hydrotalcite の生成が認められている⁽⁹⁰⁾。また、ベントナイトの変質試験においても、Hydrotalcite-type の構造を持つ鉱物の生成が認められている⁽⁶²⁾。これらのことから、ベントナイトの変質に伴い生成すると考えられるため、二次鉱物として選定する。

Stratlingite

高アルミナセメントの水和反応により生成することが報告されており⁽⁹¹⁾、特に、高アルミナセメントにシリカフェームを混合した水和実験では、C2AH8 の水和反応によって Stratlingite が生成することが報告されている⁽⁹²⁾。一方、OPC の水和により、Stratlingite が生成したという報告は認められなかった。

上記のとおり、高アルミナセメントを用いた場合にのみ生成が確認されているものであるが、Al が豊富に存在する環境下での生成が否定できないため、Stratlingite を二次鉱物として選定する。

Monocarboaluminate

POSIVA が二次鉱物として設定している鉱物であり、他の機関等では二次鉱物として設定されていない。しかしながら、炭酸イオンが存在する環境下での C₃A の水和反応、炭酸イオンの供給量が増加することにより Monosulfoaluminate (Monosulfate) から変遷すること、C4AH19 の炭酸化により生成する可能性が高いことが報告されている^{(93), (94)}。

現行の鉱物リストにおいて Monosulfoaluminate を選定していることに加え、地下水中に含まれる炭酸イオンが供給されることにより、Monosulfoaluminate から Monocarboaluminate への変遷が否定できないことから、Monocarboaluminate を二次鉱物として選定する。

C4AH13

原環センターが二次鉱物として設定している鉱物であり、他の機関等では二次鉱物として設定されていない。しかしながら、C₃A の水和反応により、C₃A の表面に C4AH13 が生成すること⁽⁹⁵⁾や、アルミン酸ナトリウム (NaAlO₂) 及び酸化カルシウム (CaO) を混合したものを水で練り混ぜし、20°C で反応させることで生成することを報告している⁽⁹⁶⁾。

これらのことから、アルカリ性条件で Ca イオン、Al イオンが存在すれば生成することが期待できるため、C4AH13 を二次鉱物として選定する。

C4AH19

原環センターが二次鉱物として設定している鉱物であり、他の機関等では二次鉱物として設定されていない。しかしながら、C₃A の水和反応により生成が報告されており⁽⁹⁴⁾、水和反応で生成する AFm 相は CaAH_n (CaO · Al₂O₃ · nH₂O) に SO₄²⁻を含んだ固溶体であるとの報告もあり、モデルによってその挙動を支持している^{(97), (98)}。したがって、C4AH19 を二次鉱物として選定する。

【硫酸塩】

Cypsum

コンクリート供試体を模擬海水に浸漬する試験において、生成が認められており⁽⁶¹⁾、ベントナイトの変質に伴い生成することが否定できないため、二次鉱物として選定する。

(3) 中深度処分を対象とした二次鉱物リスト

2.3.4(1)、(2)において知見の整理及び設定鉱物の分類を行った結果、現行の鉱物リストで設定していた二次鉱物について、中深度処分の観点から設定の妥当性を改めて確認した。その結果、国内外の機関等の鉱物リストと最新知見の調査から、網羅的に抽出された鉱物のうち、中深度処分では考慮すべき二次鉱物として新たに追加されたのは、Illite、Clinochlore、M-S-H、C-A-S-H、Tobermorite、Jennite、Afwillite、C4AH13、C4AH19、Stratlingite、Monocarboaluminate、Monosulfate、Phillipsite、Heulandite、Clinoptilolite、Chabazite、K-feldspar、Dolomiteであった。また、影響検討鉱物とするのは、Mg ケイ酸塩群では Clinochlore、Sepiolite 及び M-S-H、C-(A-)S-H 型鉱物群では C-(A-)S-H、Tobermorite、Jennite 及び Afwillite 並びにゼオライト群では Phillipsite、Heulandite、Analcime、Clinoptilolite 及び Chabazite である。また、現行の鉱物リストで設定されていた Laumontite については、熱力学的な観点から Chabazite が存在する場合には生成しないと考えられることから、Laumontite を鉱物リストから除外した。図 2.3-2 のフローに従って分類した二次鉱物の一覧を表 2.3-6 に示す。

表 2.3-6 分類した二次鉱物の一覧

(青字：設定しない鉱物、赤字：設定する鉱物、緑字：影響検討鉱物)

分類	鉱物名	分類	鉱物名	分類	鉱物名
スメクタイト※	Beidellite	C-S-H型	C-S-H	ゼオライト	Phillipsite
	Saponite		Tobermorite		Heulandite
ケイ酸塩	Illite		Jennite		Clinoptilolite
	Kaolinite		Afwillite		Analcime
	Pyrophyllite		Gyrolite		Laumontite
長石	K-feldspar	水和物	C4AH13		Chabazite
水酸化物	Brucite		C4AH19		Merlinoite
	Gibbsite		Ettringite	硫酸塩	Gypsum
炭酸塩	Dolomite		Hydrotalcite		
Mgケイ酸塩	Clinochlore		Friedel's salt		
	Sepiolite		Stratlingite		
	M-S-H		Monocarboaluminate		
C-A-S-H型	Katoite		Hydrogarnet		
	C-A-S-H		Monosulfate		

※モンモリロナイトと同じスメクタイト族であり、モンモリロナイトと同様の透水性能を持ち、これらの鉱物の生成がバリア性能に与える影響が小さいと考えられるため除外した。

2.3.5 地球化学計算による影響評価

表 2.3- 6 で影響検討鉱物に分類した鉱物について、設定した二次鉱物の違いによる生成する二次鉱物の差異及びモンモリロナイトの溶解量への影響を把握することが、ベントナイト系材料の核種移行抑制性能である低透水性の評価を行う上で重要である。そこで、地球化学計算により、設定した二次鉱物の違いによる影響を確認することに加えて、低透水性の指標の一つである透水係数も併せて算出し、ベントナイト系材料の核種移行抑制性能に対する二次鉱物の設定の留意点を取りまとめることとする。

(1) 計算体系

計算体系を図 2.3- 11 に示す。地下水組成については、降水系地下水⁽⁹⁹⁾ (表 2.3- 7) を想定し、初期セメント組成については、原子力環境整備促進・資金管理センター (2018) ⁽²⁹⁾で示されている OPC 及び FAC (表 2.3- 8) を想定し、初期ベントナイト組成については Montmorillonite、Quartz 及び Chalcedony とした (表 2.3- 9)。また、Montmorillonite の溶解速度式は pH の影響及び飽和度の影響を考慮した Sato-Cama 式を使用し⁽¹⁰⁰⁾、Quartz については Savage et al. (2002)⁽³⁶⁾で示されている速度式及びパラメータを使用した (表 2.3- 10)。本計算では、セメント中の初期鉱物の溶解及び生成は考慮するが、他の二次鉱物の生成は考慮していない。計算における評価期間は 1,000 年とした。

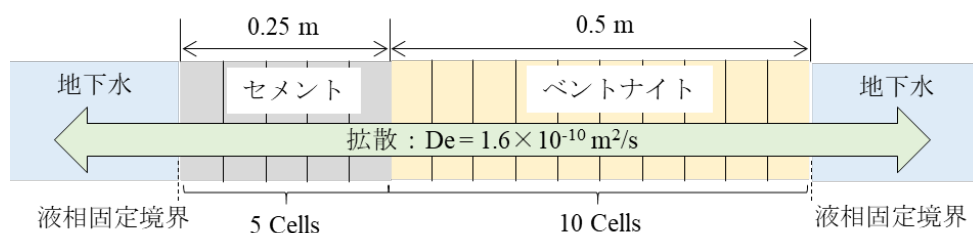


図 2.3- 11 計算体系

表 2.3-7 計算でを使用した地下水組成

pH	8.5
Eh (mV)	-281
Element	濃度 (mol/L)
Na	3.6×10^{-3}
K	6.2×10^{-5}
Ca	1.1×10^{-4}
Mg	5.0×10^{-5}
B	2.9×10^{-4}
P	2.9×10^{-6}
F	5.4×10^{-5}
Cl	1.5×10^{-5}
SO ₄	1.1×10^{-4}
NO ₃	2.3×10^{-5}
CO ₂	3.5×10^{-3}
Si	3.4×10^{-4}

表 2.3-8 初期セメント組成 (単位 : wt%)

	OPC	FAC
Portlandite	25.9	-
Ettringite	9.31	7.63
Brucite	1.93	1.59
C-S-H (1.8)	62.2	24.0
C-S-H (1.5)	-	66.2
Na ₂ O	0.267	0.219
K ₂ O	0.445	0.343

表 2.3-9 初期ベントナイト組成 (単位 : wt%)

Montmorillonite	50
Quartz	25
Chalcedony	25

表 2.3- 10 Montmorillonite 及び Quartz の溶解速度式及びパラメータ

Montmorillonite

$$Rate [mol/s] = (4.74 \times 10^{-6} e^{-39.57/RT} \frac{177 e^{20.37/RT} a_{OH^-}}{1 + 177 e^{20.37/RT} a_{OH^-}} + 1.70 e^{-69.67/RT} \frac{0.0297 e^{23.53/RT} a_{OH^-}}{1 + 0.0297 e^{23.53/RT} a_{OH^-}}) A_M \{1 - \exp(-6 \times 10^{-10} (2\Delta G_r / RT)^6)\}$$

Quartz

$$R_A [mol/m^3/s] = k_Q A_Q (a_{H^+})^n (1 - Q / K_Q)$$

A_M : Montmorillonite の反応表面積 (5.3 m²/g⁽¹⁰¹⁾)、 ΔG_r : 反応のギブスの自由エネルギーの変化 (kJ/mol)、 k_Q : 反応定数 (log k_Q = -16.3)、 n : 係数 (-0.5)、 A_Q : Quartz の反応表面積 (9.53 × 10³ m²/m³)、 Q : 加水分解反応のイオン活量積、 K_Q : 加水分解反応の平衡定数 (log K_Q = -3.74)

(2) 使用する熱力学データ及び密度データ

本計算では PHREEQC⁽¹⁰²⁾を使用し、鉱物の熱力学データ及び密度データについては BRGM データベース (THERMODDEM) を基本とし、一部収録されていない鉱物の熱力学データ及び密度データについては、他の文献等から採用した。なお、BRGM データベースは <https://thermoddem.brgm.fr/> から利用可能である。

以下に BRGM データベース以外の文献等から採用した鉱物の熱力学データ及び密度データについて記載する。

K-feldspar 及び C4AH19

日本原子力研究開発機構で整備されている地層処分システムの安全評価のための熱力学データベースを使用した。なお、本データベースは、<https://migrationdb.jaea.go.jp/> から利用可能である。

C-S-H ゲル

Atkinson et al. (1987, 1991)^{(103), (104)}で提案されているモデルより、Ca/Si = 1.8、1.5、1.3、1.1、1.0、0.9、0.833、0.6 及び 0.4 のものについての化学式及び平衡定数を抽出し、使用した。また、モル体積については、須田ほか (2014)⁽¹⁰⁵⁾で提案されている飽和状態における Ca/Si 比と密度の関係式を使用して算出した。

C-A-S-H ゲル

Myers et al. (2014)⁽¹⁰⁶⁾で提案されているモデルを基に、C-A-S-H を理想固溶体として PHREEQC に取り込んだ Elakneswaran et al. (2016)⁽¹⁰⁷⁾で採用された熱力学データを使用した。また、固溶体として生成する C-A-S-H の体積については、各端成分のモル比に対応した体積の合計値として表される。なお、C-A-S-H モデルの詳細は、Appendix I-C に記載する。

M-S-H

M-S-H については、Roosz et al. (2018)⁽¹⁰⁸⁾で示されている熱力学データを使用した。

なお、今回計算に使用した熱力学データ及び速度データは Appendix I-D に記載した。

(3) 地球化学計算のケース分け

表 2.3-6 で抽出した影響検討鉱物のうち、C-(A-)S-H 型鉱物、ゼオライト及び Mg ケイ酸塩の 3 種類の鉱物群について、鉱物の設定の差異による影響を確認するため、ケース分けした地球化学計算を実施した。また、中深度処分で使用されるセメント系材料及びベントナイト系材料は現時点で決まっていないことから、これらの材料を変更したケースの地球化学計算も実施し、使用材料の違いによる影響を確認した。

ケース 1 基本ケース

表 2.3-6 で抽出した「設定する鉱物」及び「影響検討鉱物」のすべてを二次鉱物として設定した計算を実施。C-S-H ゲルを設定する場合と C-A-S-H ゲルを設定する場合では、それぞれ別のモデルを使用することから、これらを同時に設定することはできない。したがって、C-S-H ゲルを設定する場合と C-A-S-H ゲルを設定する場合のそれぞれについて計算を行った（ケース 2 及びケース 3 も同様）。

ケース 2 結晶性の C-S-H の設定の影響

Tobermorite、Jennite 及び Afwillite（以下「結晶性の C-S-H」という。）は、C-(A-)S-H ゲルよりも熱力学的に安定性が高く、C-(A-)S-H ゲルから結晶性の C-S-H の構造を有する結晶性の高い鉱物に変遷したという報告もある。一方、ナチュラルアナログ研究では C-S-H ゲルが数千年以上にわたって結晶化せずに存続している事例が報告されている。これらを踏まえて、結晶性の C-S-H が生成する場合と C-(A-)S-H ゲルが存続する場合を比較する。

ケース 3 C-(A-)S-H ゲルに対する Ca 型ゼオライトの影響

室内実験及び in situ 試験において、C-(A-)S-H ゲルと Ca 型ゼオライトの共存は認められておらず、C-(A-)S-H ゲルのみの生成が認められている例が報告されている。また、C-(A-)S-H ゲルから Ca 型ゼオライトへの変遷がナチュラルアナログ研究で示唆されている。これらのことから、C-(A-)S-H ゲルはゼオライトよりも生成速度が大きいことが考えられる。一方、Ca 型ゼオライトの生成速度は明らかではなく、長期的には C-(A-)S-H ゲルと Ca 型ゼオライトが共存する可能性も否定できない。したがって、C-(A-)S-H ゲルが生成する状況において（結晶性の C-S-H を除外）、Ca 型ゼオライトが共存する場合及び共存しない場合を比較する。

なお、Ca 型ゼオライトは、Chabazite、Heulandite (Ca)、Phillipsite (Ca)、Clinoptilolite (Ca)のことをいう。

ケース 4 ゼオライトの影響

小田ほか(2005)⁽³⁸⁾では、ゼオライトについて安定相 (Analcime、Laumontite) と準安定相 (Phillipsite、Heulandite、Clinoptilolite) に分類し、ケース分けを行っているが、ほかにこのようなケース分けを実施している例はない。また、2.3.4 において Chabazite を設定することで Laumontite の設定は不要とした。これらを踏まえて、ケース分けの必要性も含めた検討を行うため、小田ほか(2005)⁽³⁸⁾で準安定相として分類されている鉱物のみを設定した場合、生成の影響度を確認するため本計算において生成しやすいと考えられるものから順に除外した場合について比較する。

ケース 5 Mg ケイ酸塩の影響

これまで使用してきた鉱物モデルでは Mg ケイ酸塩として **Sepiolite** を設定していたが、最新知見より、**Clinochlore** 及び **M-S-H** の生成が示唆されている。それぞれの鉱物が生成する場合について比較する。

ケース 6 使用材料の違いによる影響

ケース 1～5 まではセメント系材料として **OPC** を想定してきたが、中深度処分の廃棄物埋設地では、フライアッシュを混合した **FAC** の使用も想定される。**FAC** は **OPC** とセメント間隙水中の組成が異なるため、ベントナイト/セメント界面の二次鉱物種にも影響を与えられられることから、**FAC** を使用した場合についても計算を行い、**OPC** を使用した場合との違いについて比較する。

また、ケース 1～5 まではベントナイト中の **Montmorillonite** の交換性陽イオンは **Na** イオンのもの (**Na** 型ベントナイト) の使用を想定してきたが、中深度処分の廃棄物埋設地では交換性陽イオンが **Ca** イオンの **Montmorillonite** が主成分のベントナイト (**Ca** 型ベントナイト) の使用も想定されるため、**Ca** 型ベントナイトを使用した場合についても計算を行い、**Na** 型ベントナイトを使用した場合との違いについて比較する。

ケース分け及び具体的な二次鉱物の設定について表 2.3- 11 にまとめた。

表 2.3- 11 評価ケース及び設定する二次鉱物

評価ケース	設定する二次鉱物
1	①全鉱物 (C-S-H ゲルを設定) ②全鉱物 (C-A-S-H ゲルを設定)
2	③結晶性の C-S-H を除外し、C-S-H ゲルを設定 ④結晶性の C-S-H を除外し、C-A-S-H ゲルを設定
3	⑤結晶性の C-S-H 及び Ca 型ゼオライトを除外し、C-S-H ゲルを設定 ⑥結晶性の C-S-H 及び Ca 型ゼオライトを除外し、C-A-S-H ゲルを設定
4	(C-S-H ゲルを設定) ⑦結晶性の C-S-H を除外し、ゼオライトとして Phillipsite、Heulandite 及び Clinoptilolite のみを設定 ⑧結晶性の C-S-H 及び Chabazite を除外 ⑨結晶性の C-S-H、Chabazite 及び Heulandite を除外 ⑩結晶性の C-S-H、Chabazite、Heulandite 及び Phillipsite を除外
5	(C-S-H ゲルを設定) ⑪結晶性の C-S-H 及び Clinochlore を除外 ⑫結晶性の C-S-H、Clinochlore 及び Sepiolite を除外
評価ケース	設定する二次鉱物及び想定条件
6	全鉱物 (C-S-H ゲルを設定) ⑬セメント系材料として FAC を使用 ⑭ベントナイト系材料として Ca 型ベントナイトを使用

(4) セメント成分の地下水への溶脱

本計算では実際のセメント系材料と比べると大きい拡散係数を与えており、セメントからベントナイトへのアルカリ成分の供給のほか、境界条件である地下水への溶脱も起こっている。地下水へのアルカリ成分の溶脱がどの程度が確認するため、地下水への溶脱のみを考慮した計算を実施した(図 2.3- 12)。1,000 年後では地下水との接触界面では Portlandite の溶脱が進み、pH は C-S-H ゲルの溶脱によって支配されている。一方、反対側では Portlandite が残存しており、pH は 12.5 程度を維持している。したがって、本計算のような大きい拡散係数を与えた場合であっても 1,000 年という評価期間であれば、ベントナイトの変質に寄与するセメント中のアルカリ成分の大部分が地下水へ流出してしまうということはない。

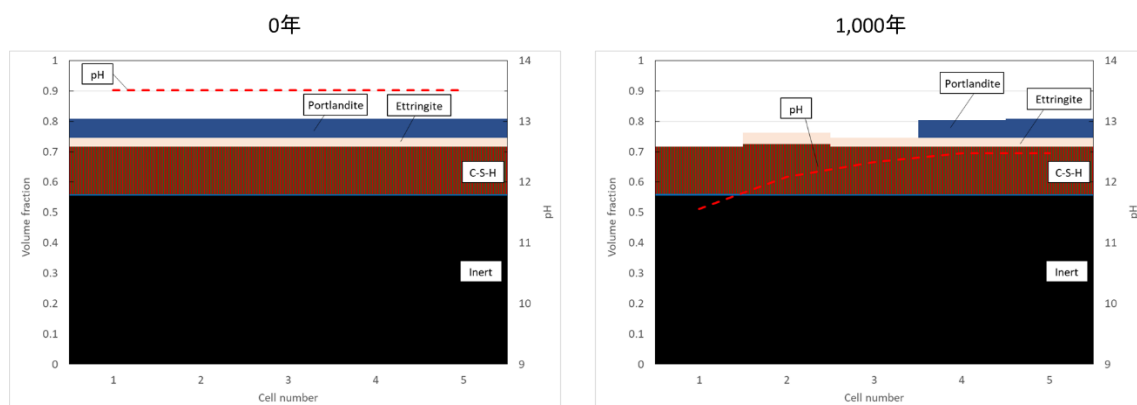


図 2.3- 12 0年及び1,000年時点におけるセメント (OPC) の鉱物組成及び pH の分布

(5) 計算結果

各評価ケースの結果を記載する前に、結果を表す際の表記について説明する。各 Cell の鉱物の変遷については、体積割合 (Volume fraction) を使用して示す。ここで、体積割合は以下の式により算出した。

$$\text{体積割合} = \frac{(\text{水 1 L に対する鉱物生成量 (mol)}) \times (\text{鉱物のモル体積 (cm}^3/\text{mol)})}{(\text{初期の各 Cell の体積 (cm}^3\text{)})}$$

$$\text{Cell の体積} = \text{液相の体積 (cm}^3\text{)} + \text{固相の体積 (cm}^3\text{)}$$

実現象では反応と共に間隙量が増減し、それに伴い水の量も変化するが、PHREEQC では各 Cell において液相量 (水 1L) は一定、固相量 (鉱物量) のみが増減するため、間隙量の増減を考慮することができない。したがって、本計算では、体積割合 (Volume fraction) が 1 を超える場合もあることに注意が必要である。本計算は、間隙量の増減に伴う物質移行量の変化を考慮しないものであり、モンモリロナイトの溶解量及び二次鉱物の生成量については過剰な結果となるものと考えられる。しかしながら、設定する二次鉱物の違いにより、生成する鉱物の差異及びモンモリロナイトの溶解量の傾向を把握するためには、本計算体系でも可能であると判断した。

次にモンモリロナイト残存量及び体積割合から各 Cell の透水係数及び全体の平均である等価透水係数 K_{me} を算出した。各 Cell における透水係数 K_i (m/s) は以下の式を用いて算出した (平成 25 年度委託事業⁽²⁷⁾)。

Na型ベントナイトの場合

$$K_i = 1.2 \times 10^{-7} \cdot I_s^{1.5} \cdot 10^{-0.0042\rho_m} \cdot (7.9 \times 10^{-5}T^2 - 1.9 \times 10^{-2}T - 0.21)$$

Ca型ベントナイトの場合

$$K_i = 2.5 \times 10^{-7} \cdot 10^{-0.0044\rho_m} \cdot 10^{0.5} \cdot I_s^{0.3} \cdot (7.9 \times 10^{-5}T^2 - 1.9 \times 10^{-2}T - 0.21)$$

ここで、 I_s はイオン強度 (mol/L)、 ρ_m は有効モンモリロナイト密度 (kg/m³)、 T は温度 (K) である。イオン強度については $I_s = 0.1$ mol/L として透水係数を算出した。

有効モンモリロナイト密度 ρ_m は、以下の式を用いて算出した。

ρ_m

$$= \frac{\text{(各 Cell のモンモリロナイトの重量 (kg))}}{\text{(各 Cell のモンモリロナイトの体積 (m}^3\text{))} + \{ \text{(初期の各 Cell の体積 (m}^3\text{))} - \text{(各 Cell の鉱物体積 (m}^3\text{))} \}}$$

また、等価透水係数 K_{ave} については、以下の式を用いて算出した。

$$K_{ave} = \frac{\text{考慮する Cell 数}}{\sum_i \left(\frac{1}{K_i} \right)}$$

ここで、 K_i は i 番目の Cell の透水係数を表す。

前述したとおり、本計算においては体積割合が 1 を超えることがあり、これは「各 Cell の鉱物体積」が「初期の各 Cell の体積」よりも大きくなることを表す。このような場合については、有効モンモリロナイト密度を算出できないため、計算から除外した。また、算出した透水係数が 1×10^{-14} m/s 未満となった場合については、使用した透水係数算出式の適用範囲外と判断し、結果から除外した。

【ケース 1】 (基本ケース)

設定する二次鉱物①及び②は、同一の計算結果となった。いずれの場合も C-S-H ゲル及び C-A-S-H ゲルの生成は認められず、熱力学的により安定な Tobermorite が生成した (図 2.3-13)。また、1,000 年後の鉱物組成について、Cell 1 (セメントと接触している Cell) では Chabazite、Phillipsite (K)、Clinochlore 及び Calcite が生成し、Cell 2 以降では Phillipsite (Na) が主に生成しており、Tobermorite を除くとゼオライトが主な二次鉱物である。

Cell 1 においてモンモリロナイトの溶解が顕著に進行しているが、Cell 2 以降では溶解量が小さくなっている。

透水係数については、Cell 1 において、モンモリロナイトの残存量は少ないものの二次鉱物の生成により、体積割合が 1 に近づき、Cell 1 の透水係数が 1×10^{-14} m/s を下回った。Cell 2 については、透水係数が他の Cell よりも数倍程度大きくなっているものの、等価透水係数としては 1×10^{-13} m/s を下回るものであった (図 2.3-14)。

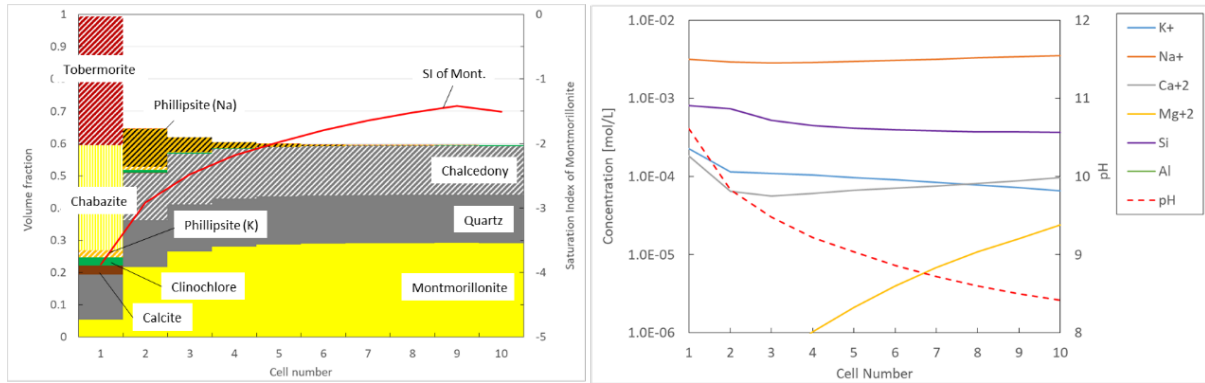


図 2.3- 13 ケース 1 の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

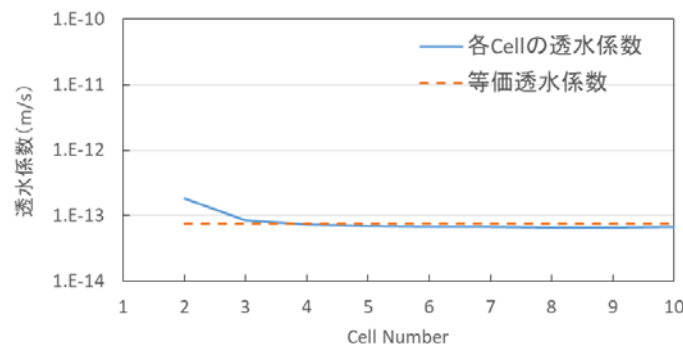


図 2.3- 14 ケース 1 の透水係数 (1,000 年後)

【ケース 2】(結晶性の C-S-H の設定の影響)

1,000 年後の鉱物組成について、③C-S-H ゲルを設定した場合は Cell 1 に C-S-H ($\text{Ca/Si} = 0.9$) が生成し (図 2.3- 15)、④C-A-S-H ゲルを設定した場合は Cell 1 に C-A-S-H ($\text{Ca/Si} = 0.84$, $\text{Al/Si} = 0.02$) が生成しており (図 2.3- 16)、両者の Ca/Si 比は同程度の値であった。生成した二次鉱物の種類については両者に差は認められないが、④C-A-S-H ゲルを設定した場合のほうがモンモリロナイトの溶解が進行している。

ケース 1、ケース 2③及びケース 2④の Cell 1 における鉱物の経時変化を見ると、ケース 1 では Tobermorite の生成量が時間の経過とともに増加している (図 2.3- 17)。ゼオライトに関しては、Heulandite (Ca) が 400 年後までは生成しているものの、その後は消失し、代わりに Chabazite が生成している。

ケース 2③については、C-S-H ($\text{Ca/Si} = 0.833$) が 300 年後まで生成し、その後は C-S-H ($\text{Ca/Si} = 0.9$) に置き換わっている。また、Heulandite (Ca) の生成量の増加はケース 1 と同様に 400 年後までであり、その後は Chabazite の生成が見られるが、1,000 年後であっても Heulandite (Ca) は消失していない。

ケース 2④については、C-A-S-H ゲルの端成分のうち、CSH_T5C 及び CSH_TobH が主な構成要素であり、その他の端成分は 1 桁以上生成量が少ない。その他の鉱物変遷については、ケース 2③と同様である。

液相組成を比較すると、Si 濃度については、Cell 2 において、一部期間で同程度となっているものの、全体的にはケース 1 はケース 2 よりも低い値をとっている (図 2.3- 18)。pH については、ケース 1 において値の増加及び減少が見られるものの、ケース 1 の方が低い値をとっている期間が長い (図 2.3- 19)。1,000 年後でのケース 1 における Tobermorite の生成量は 2.8 mol であり、ケース 2

③における C-S-H ゲルの生成量は 10.2 mol である。反応式から、Tobermorite が 2.8 mol 生成することにより、液相に 28 mol の H⁺ が放出され、C-S-H ゲル (Cs/Si = 0.9) が 10.2 mol 生成することにより、液相に 20.4 mol の H⁺ が放出されたと考えられる。この反応により、Tobermorite が生成したケース 1 のほうが液相の pH が低い状態となりやすいものと考えられ、600 年後までの pH の経時変化と整合的である。また、ケース 1 の pH の経時変化において 600 年後に見られる急激な上昇は、Heulandite (Ca) が消失したことが影響している可能性がある。pH の差異による影響は、単純に pH の増加に伴うモンモリロナイトの溶解速度の増加に加え、飽和度による溶解速度への変化にも影響を及ぼす。pH の変化と飽和指数 (SI) の変化には関係性があると判断できる (図 2.3-20)。このことから、pH が増加することにより、モンモリロナイトの溶解速度式のうち、pH の影響項の値が大きくなることに加え、飽和度の影響項も変化したことで、モンモリロナイトの溶解量に差が生じたと考えられる。

透水係数については、モンモリロナイトの残存量は少ないが、二次鉱物の生成量が多い③については、Cell 1 の透水係数が 3.6×10^{-14} m/s となった一方、二次鉱物の生成量が少ない④については、Cell 1 の透水係数が 1.8×10^{-10} m/s と大きくなった。また、Cell 2 については③及び④の両者について、ケース 1 よりも大きな透水係数となっているが、等価透水係数としては、これらに大きな差は認められなかった (図 2.3-21)。

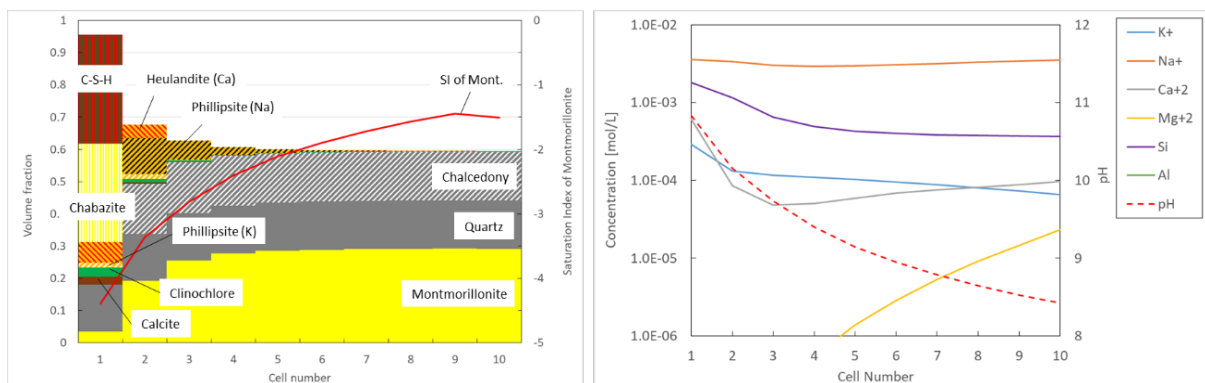


図 2.3-15 ケース 2 ③の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

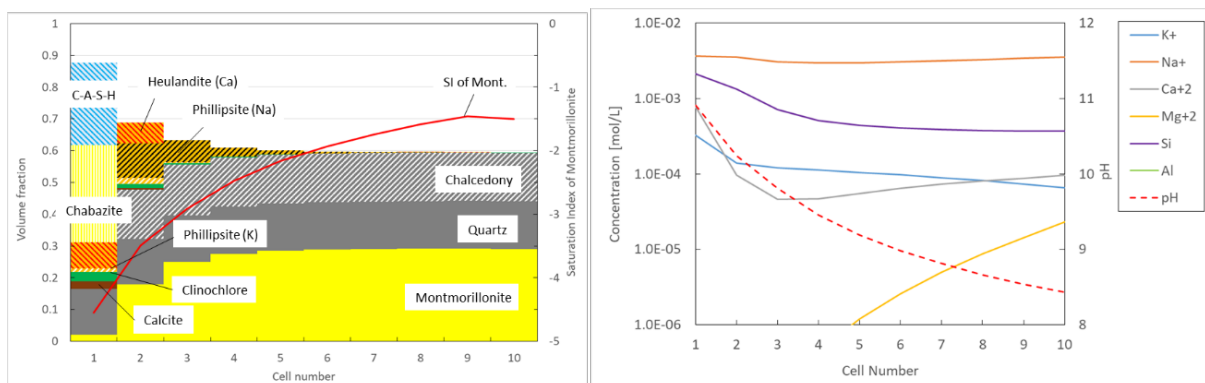


図 2.3-16 ケース 2 ④の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

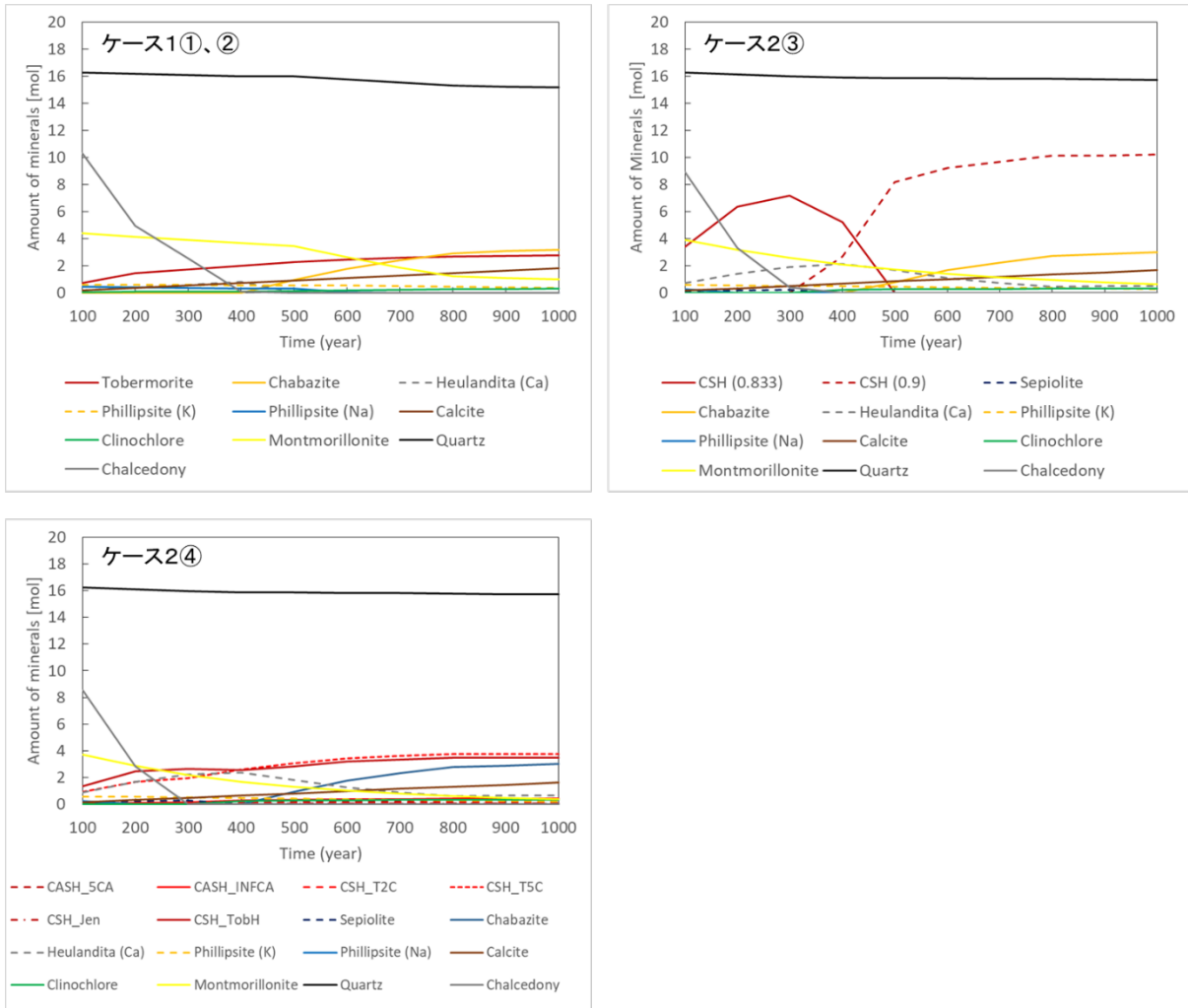


図 2.3-17 ケース 1①、②とケース 2③、④の Cell 1 における鉱物の経時変化

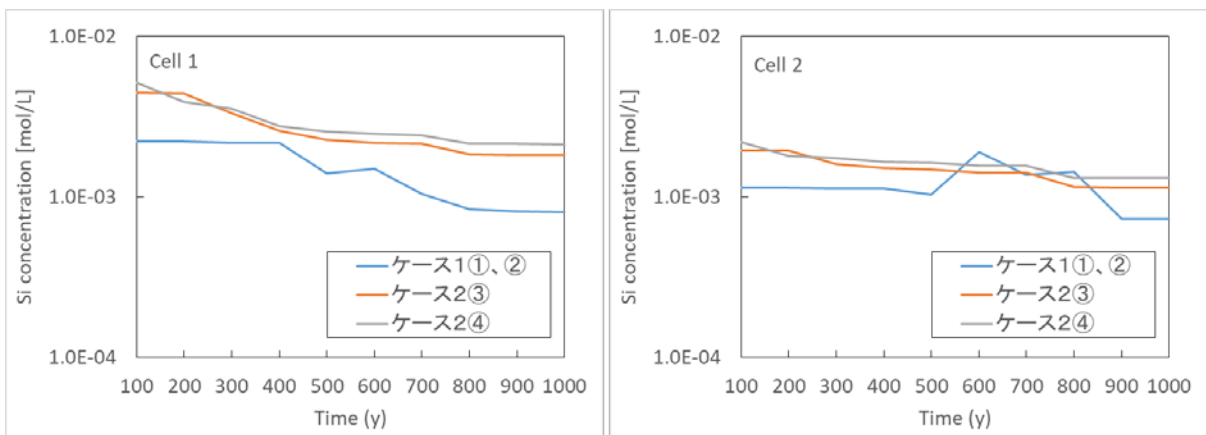


図 2.3-18 ケース 1①、②とケース 2③、④の Si 濃度経時変化の比較

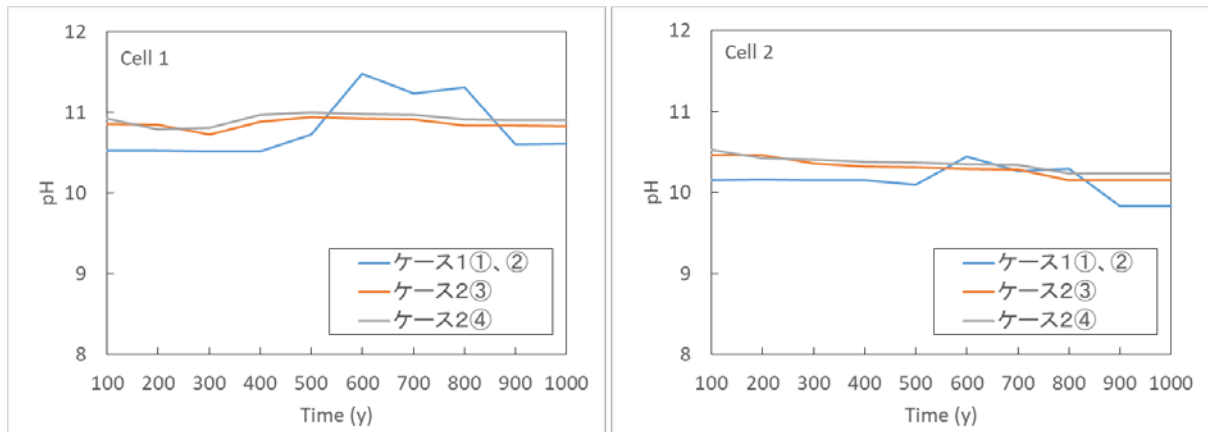


図 2.3-19 ケース 1 ①、②とケース 2 ③、④の pH 経時変化の比較

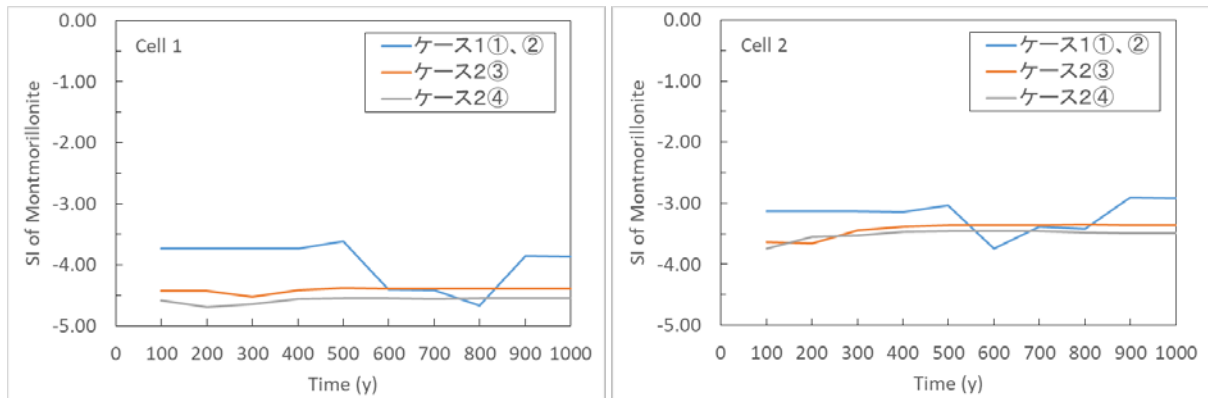


図 2.3-20 ケース 1 ①、②とケース 2 ③、④の飽和指数 (SI) 経時変化の比較

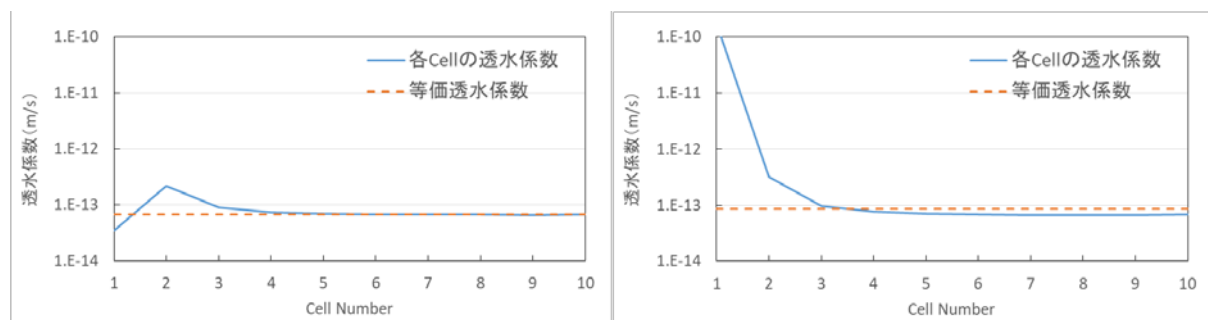


図 2.3-21 ケース 2 の透水係数 (1,000 年後)
(左図 : ③、右図 : ④)

【ケース 3】(C-(A-)S-H ゲルに対する Ca 型ゼオライトの影響)

1,000 年後の鉱物組成について、⑤C-S-H ゲルを設定した場合は Cell 1 に C-S-H (Ca/Si = 1.0) が生成したほか、Al イオンの消費先として Gibbsite の生成が見られた (図 2.3-22)。⑥C-A-S-H ゲルを設定した場合は Cell 1 に C-A-S-H (Ca/Si = 0.93, Al/Si = 0.09) の生成が見られた (図 2.3-23)。このほかの二次鉱物については両者で差異は見られなかった。

Cell 1 における鉱物の経時変化を見ると、⑤では 400 年後までは C-S-H (Ca/Si = 0.833) が生成し、その後 C-S-H (Ca/Si = 1.0) が生成している (図 2.3-24)。また、500 年後においてのみ C-S-H (Ca/Si

=0.9)の生成が見られる。⑥ではC-A-S-Hゲルの端成分として、CSH_T5C、CASH_INFCA、CSH_TobH及びCASH_5CAが主に生成している。その他の鉱物については、前述のとおり、Gibbsiteを除いて同様である。

ケース2と比較すると、C-(A-)S-Hの生成量が増加しており、C-(A-)S-HとCa型ゼオライトの生成が競合していると考えられる。また、ケース2と比べると、モンモリロナイトの残存量が多くなっている。Ca型ゼオライトが生成していないことにより、Cell1において液相のAl濃度が3~4桁程度高くなっていることがモンモリロナイトの残存量が多くなった主な原因として考えられる(図2.3-25、図2.3-26、図2.3-27、図2.3-28)。なお、⑤及び⑥におけるSi濃度の低下は、C-S-HゲルのCa/Si比の変化による影響と考えられる。

透水係数については、⑤及び⑥の両者について、モンモリロナイトの溶解が進行していたCell1においては、二次鉱物の生成量が多く、透水係数が 1×10^{-14} m/sを下回った。Cell2においては、モンモリロナイトの溶解がほとんど進行していないため、等価透水係数とほぼ同じ 1×10^{-13} m/s程度となった(図2.3-29)。

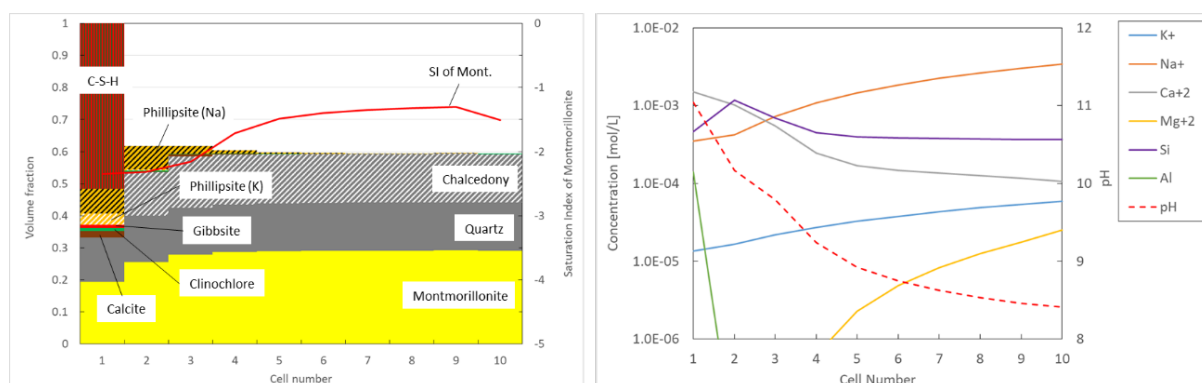


図 2.3-22 ケース3⑤の鉱物の体積割合及び液相組成(1,000年後)

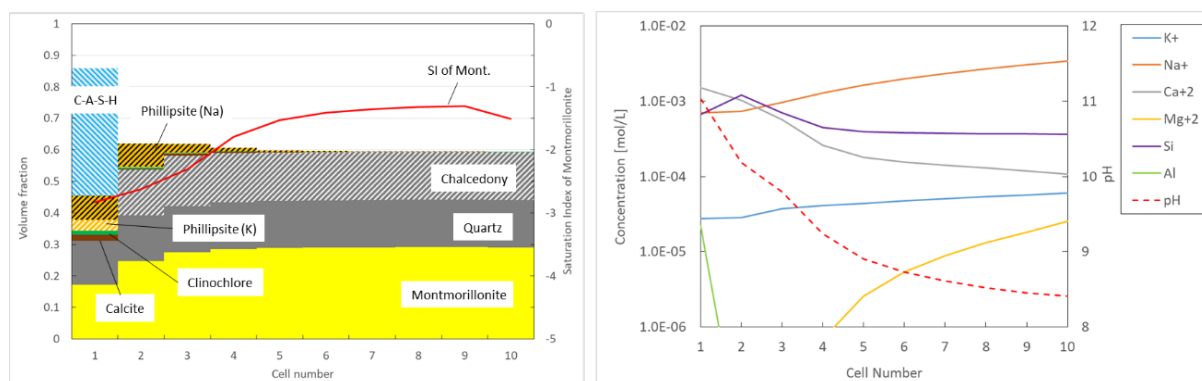


図 2.3-23 ケース3⑥の鉱物の体積割合及び液相組成(1,000年後)

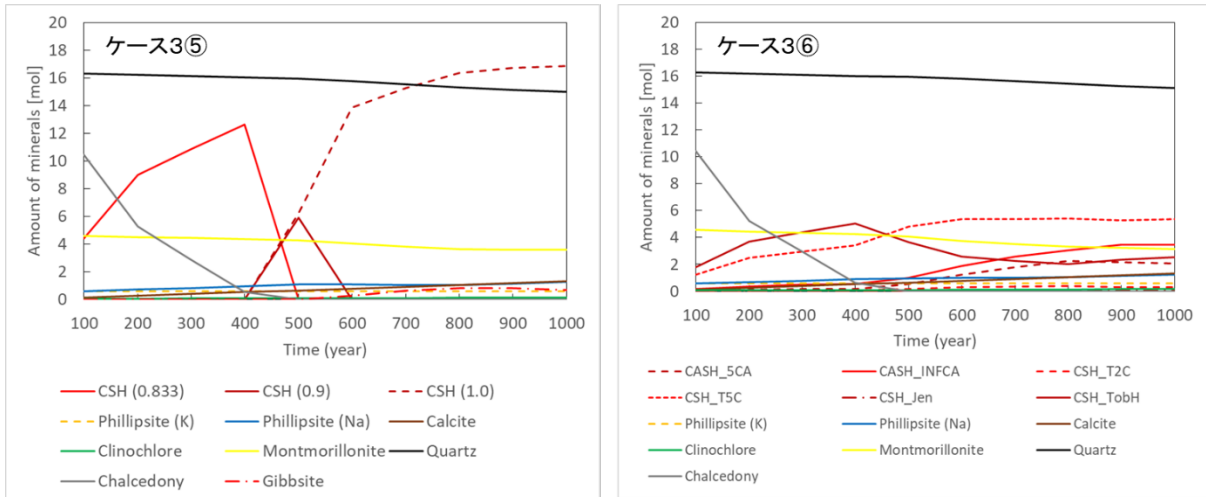


図 2.3-24 ケース 3 ⑤及び⑥の Cell 1 における鉱物の経時変化

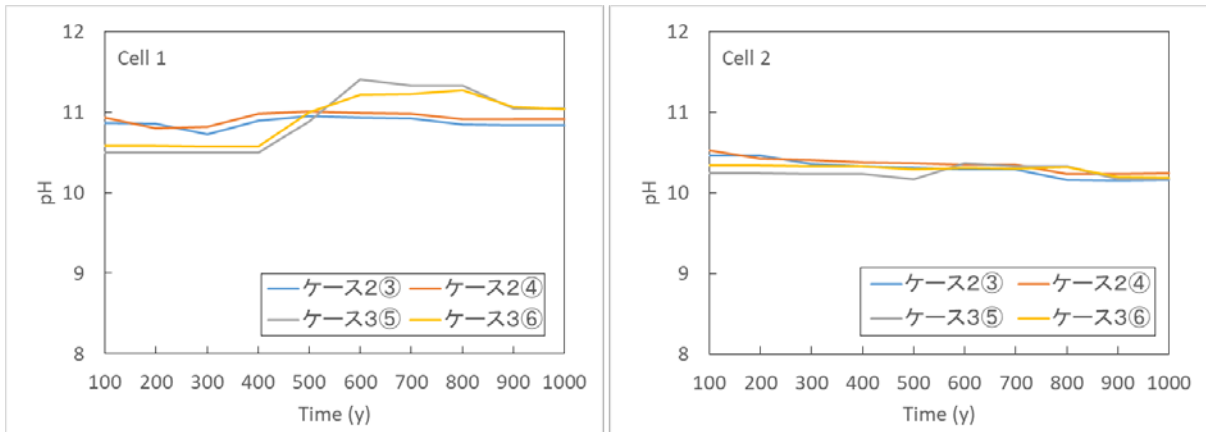


図 2.3-25 ケース 2 ③、④とケース 3 ⑤、⑥の pH 経時変化の比較

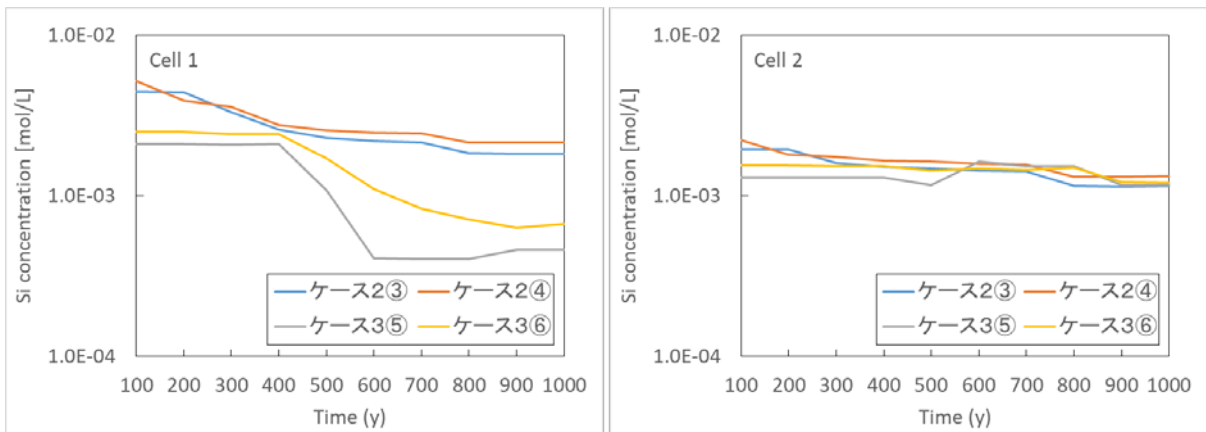


図 2.3-26 ケース 2 ③、④とケース 3 ⑤、⑥の Si 濃度経時変化の比較

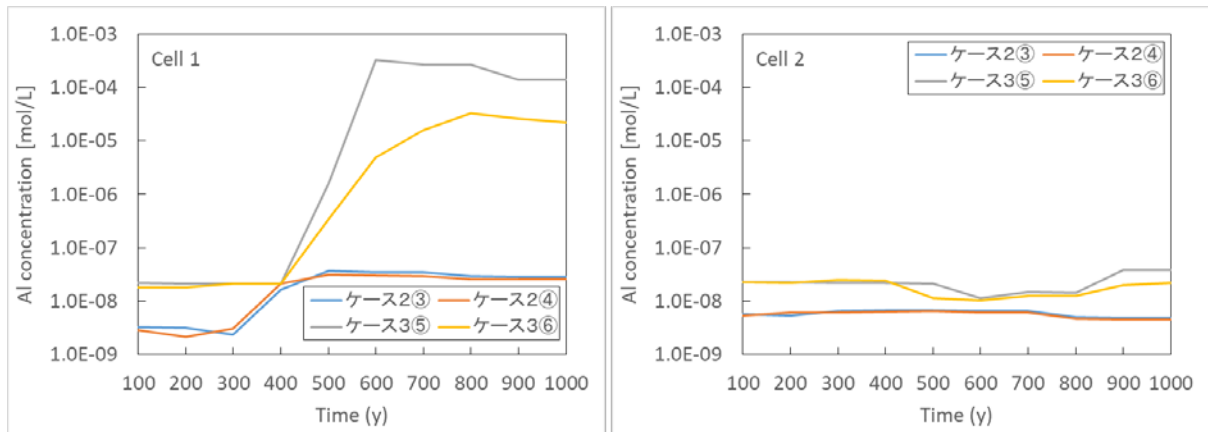


図 2.3-27 ケース 2③、④とケース 3⑤、⑥の Al 濃度経時変化の比較

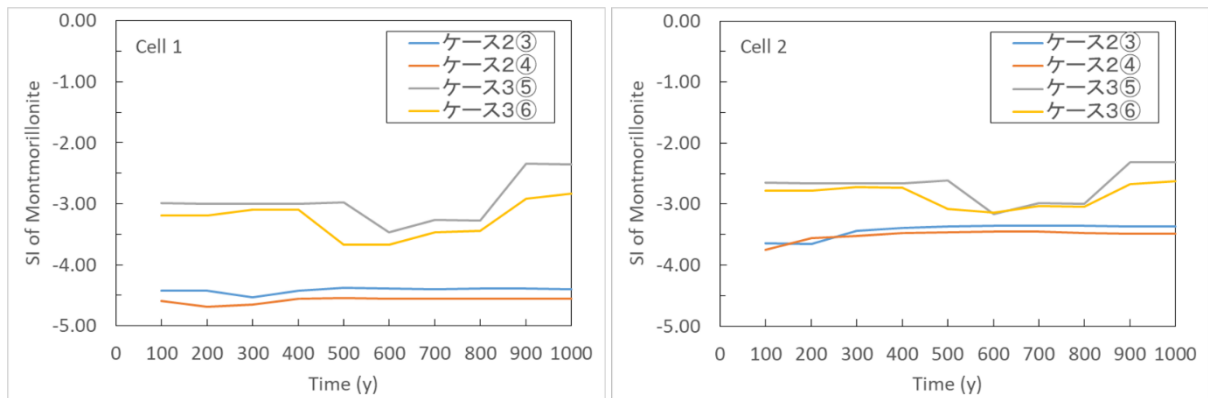


図 2.3-28 ケース 2③、④とケース 3⑤、⑥の飽和指数 (SI) 経時変化の比較

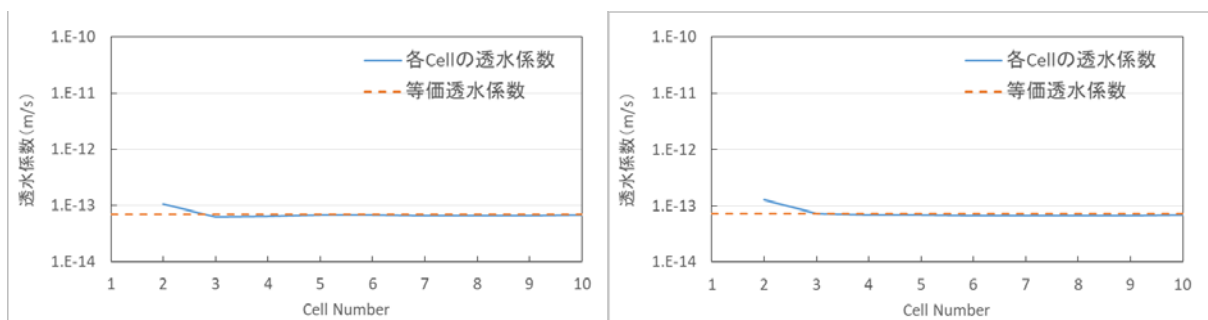


図 2.3-29 ケース 3 の透水係数 (1,000 年後)
(左図 : ⑤、右図 : ⑥)

【ケース 4】(ゼオライトの影響)

1,000 年後の鉱物組成について、⑦Phillipsite、Heulandite 及び Clinoptilolite を設定した場合は、Heulandite (Ca)の生成が卓越し、Cell 1 では Phillipsite (K)、Cell 2 以降では Phillipsite (Na)の生成が見られたが、Clinoptilolite の生成は見られなかった (図 2.3-30)。⑧Chabazite を除外した場合については、小田ほか (2005) ⁽³⁸⁾で安定相に分類されている Analcime が含まれているにもかかわらず、⑦と同様の結果であった。⑨Chabazite 及び Heulandite を除外した場合は、Phillipsite (Ca)の生成が卓越しているものの、⑧と同様に Analcime の生成は見られなかった (図 2.3-31)。⑩Chabazite、Heulandite

及び Phillipsite を除外した場合は、ゼオライトとして Analcime の生成が見られたほか、K イオンの消費先として、K-feldspar の生成が見られた (図 2.3- 32)。

Cell 1 の鉱物の経時変化を見ると、C-S-H ゲルの生成量及び各 Ca/Si 比のものが生成する時期に差が見られる (図 2.3- 33)。また、⑦及び⑧で 300 年後まで Sepiolite の生成が見られるが、⑨及び⑩では生成が見られない。Chalcedony については、⑦及び⑧ < ⑨ < ⑩の順に残存期間が長くなっている。本計算では小田ほか (2005) (38)で準安定相に分類されている設定 (⑦) に、安定相に分類されている Analcime を設定した場合 (⑧) であっても結果は変わらず、Phillipsite (Na)の生成が優位であった。Analcime の Si/Al 比は Si/Al=2 であるのに対し、Phillipsite (Na)は Si/Al=3 であり、Savage et al. (2007) (71)で指摘されている Si/Al 比が大きい場合は、Analcime よりも Phillipsite が形成しやすいということと整合している。pH が上昇するとゼオライトの Si/Al 比が低下することが示されており(67)、この考え方も整合している。また、室内実験における Analcime の生成は、その多くが高 pH 領域 (pH > 13) であり、本計算の pH 領域は pH < 11 であるため、この生成条件の差異とも整合的である。

モンモリロナイトの溶解量は⑦、⑧ > ⑨ > ⑩の順に小さくなった。

(⑦、⑧、⑨の比較) ⑦、⑧と⑨の Cell 1 を比較すると、pH は⑦、⑧のほうがわずかに高い (図 2.3- 34)。Si 及び Al 濃度は 350 年後頃まで⑦、⑧のほうが高いが、その後 600 年後頃まで⑨のほうが高くなり、その後は同程度の値となった (図 2.3- 35、図 2.3- 36)。

(⑦、⑧、⑨と⑩の比較) ⑩に関しては⑦～⑨と比べて、Cell 1 の pH が 500 年以降で低く、Si 濃度は一部期間を除き高い値をとっており、Al 濃度は 400 年後以降で低い値をとっている。Cell 2 以降について、⑩の pH は⑦～⑨よりも高い値をとる期間は長い。飽和指数 (SI) の経時変化を見ると、モンモリロナイトの溶解量と整合性が確認できる (図 2.3- 37)。したがって、pH 及び液相濃度が飽和指数 (SI) の差として現れ、モンモリロナイトの溶解量の差になったと考えられる。

透水係数については⑦及び⑧の Cell 2 で、⑨、⑩よりも高い値をとっているものの、Cell 3 以降の透水係数はどの設定においても大きな差異はなく、等価透水係数としてはいずれの場合も 1×10^{-13} m/s 以下となっている (図 2.3- 38)。

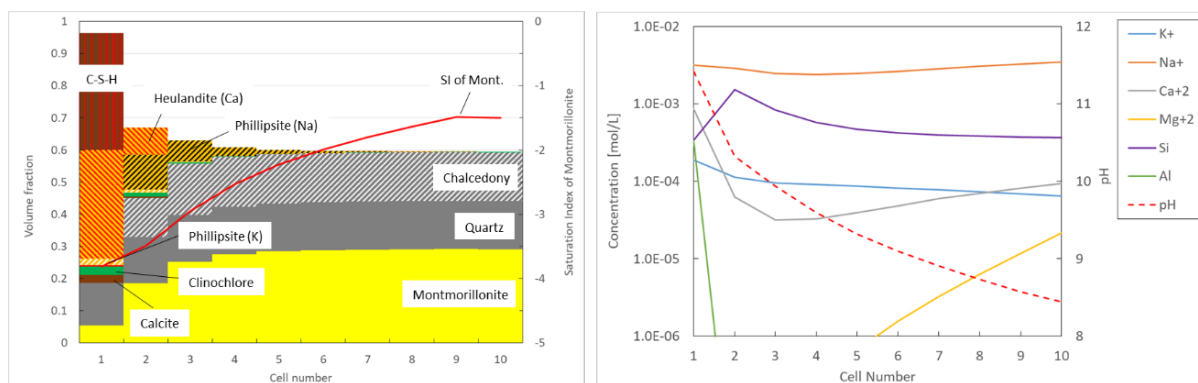


図 2.3- 30 ケース 4 ⑦及び⑧の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

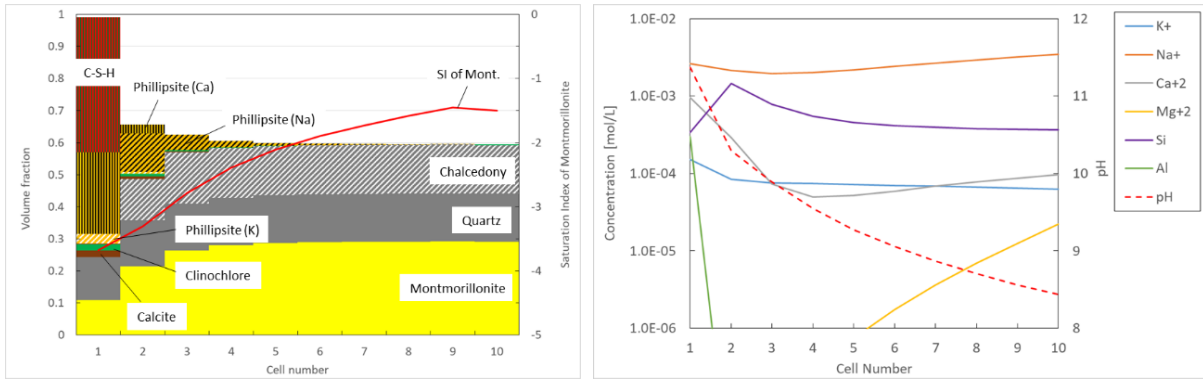


図 2.3-31 ケース 4 ⑨の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

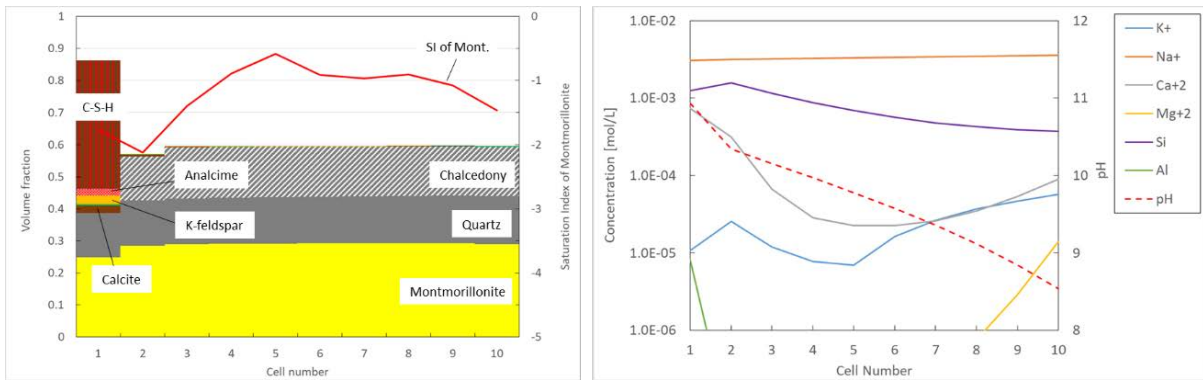


図 2.3-32 ケース 4 ⑩の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

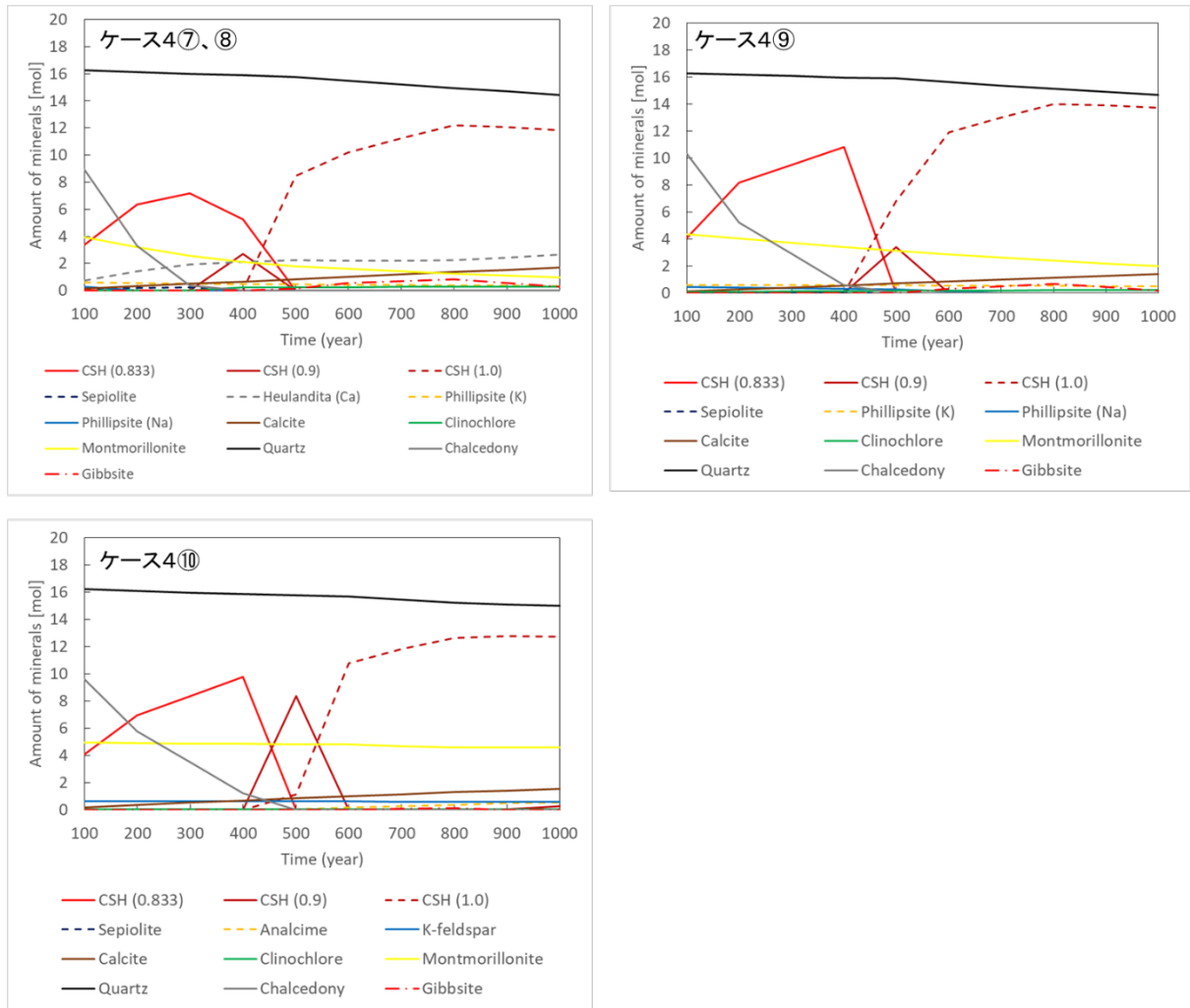


図 2.3-33 ケース 4⑦～⑩の Cell 1 における鉱物の経時変化

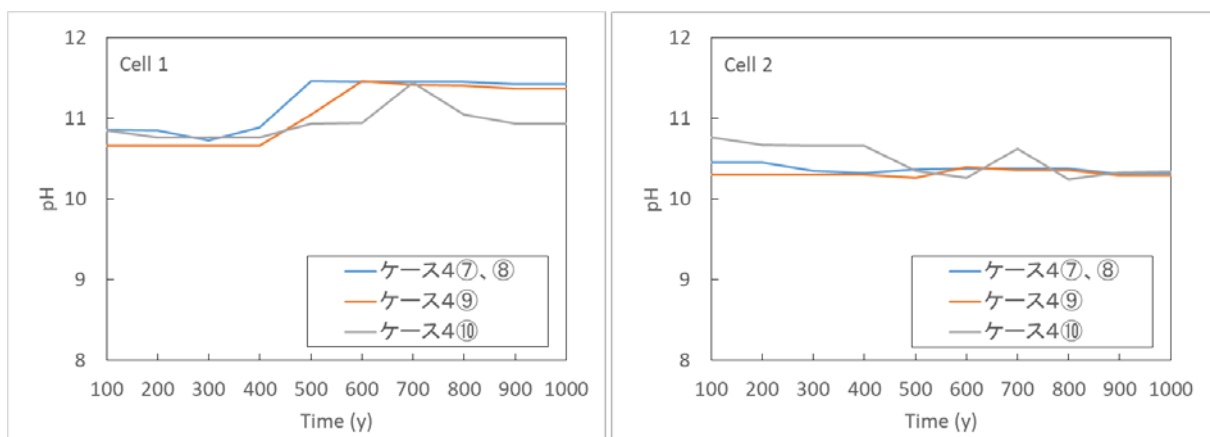


図 2.3-34 ケース 4⑦、⑧、⑨、⑩の pH 経時変化の比較

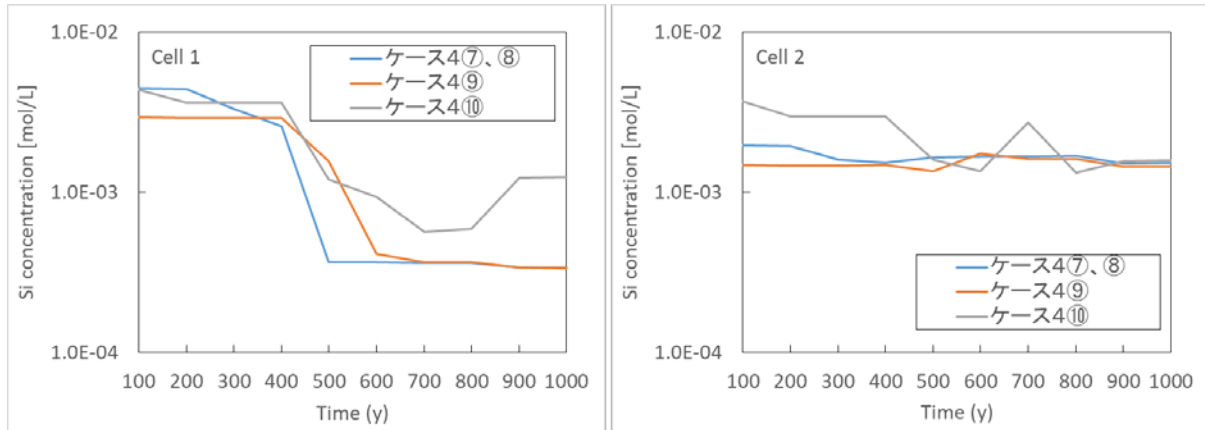


図 2.3-35 ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の Si 濃度経時変化の比較

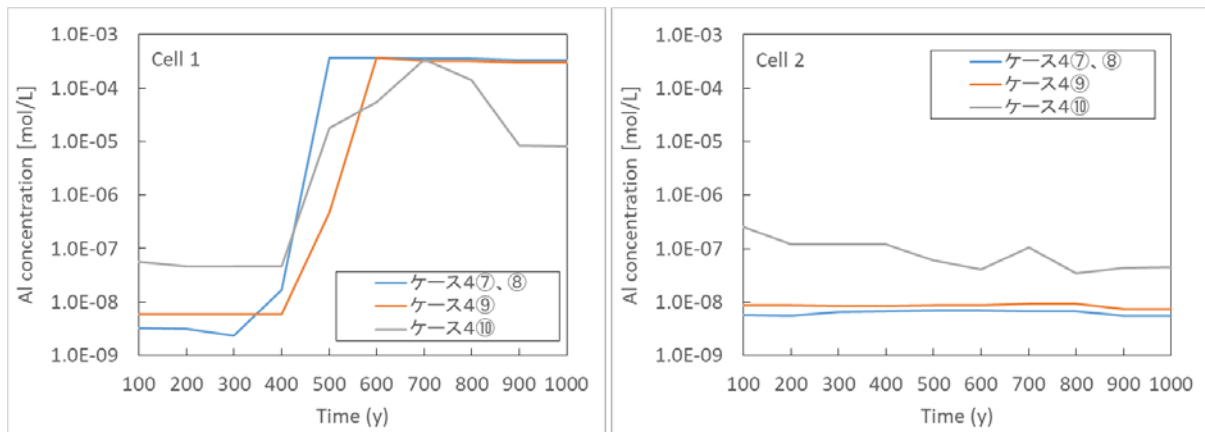


図 2.3-36 ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の Al 濃度経時変化の比較

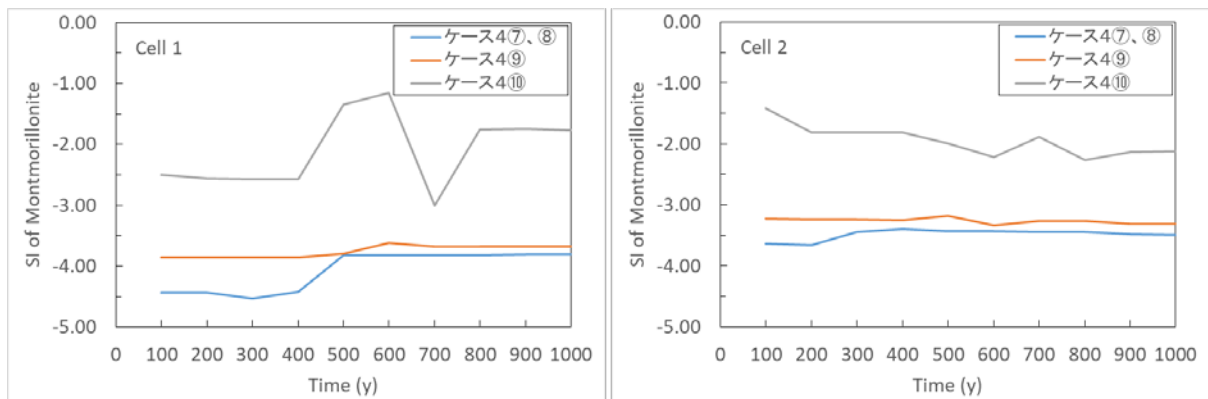


図 2.3-37 ケース 4 ⑦、⑧、⑨、⑩の飽和指数 (SI) 経時変化の比較

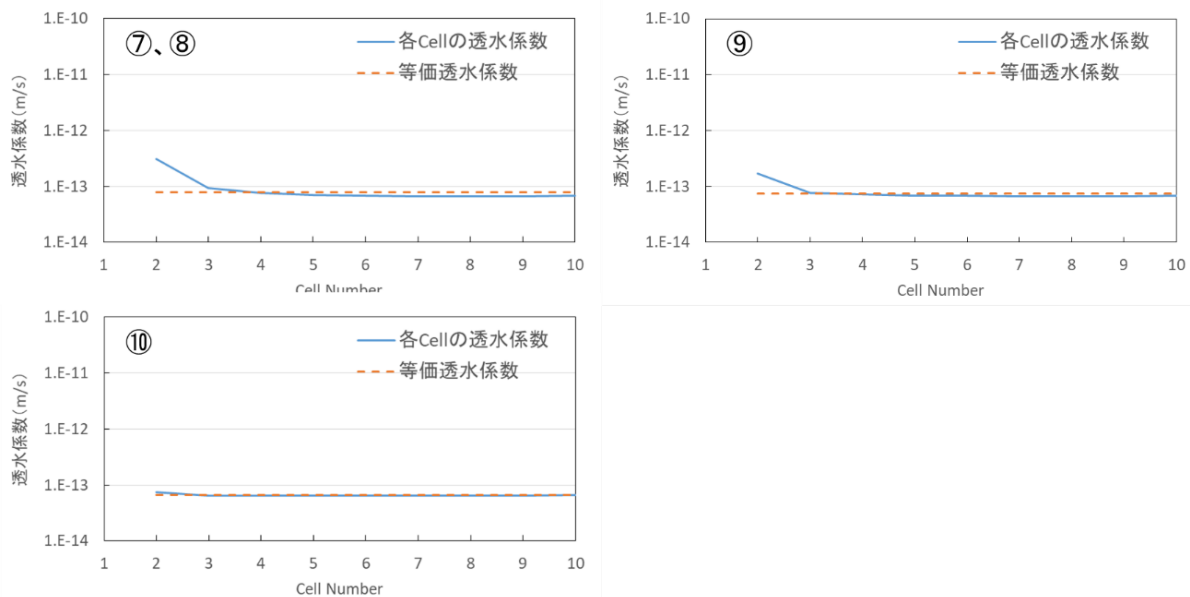


図 2.3-38 ケース 4 の透水係数 (1,000 年後)

【ケース 5】(Mg ケイ酸塩の影響)

1,000 年後の鉱物組成について、⑪では Sepiolite が生成し、⑫では M-S-H が微量生成した (図 2.3-39、図 2.3-40)。生成している他の鉱物 (ゼオライト) については、生成量に差はあるものの、種類に両者の差は見られなかった。

Cell 1 における鉱物の経時変化を見ると、C-S-H ゲルの生成量及び各 Ca/Si 比のものが生成する時期に差が見られる (図 2.3-41)。

⑪とケース 2 ③を比較すると、モンモリロナイトの溶解量に大きな差異は見られないが、わずかに⑪の溶解がケース 2 ③よりも進行している。ケース 2 ③の Cell 1 で生成している Heulandite (Ca) については、⑪の Cell 1 では 600 年後まで生成していたものの、その後消失している。これに伴い、pH の上昇等の液相組成に変化が生じ、モンモリロナイトの溶解量に差が現れたと考えられる (図 2.3-42、図 2.3-43、図 2.3-44、図 2.3-46)。ただし、Sepiolite については、pH9.5 以上では生成が認められないという報告があり⁽⁵³⁾、本結果はこの報告と齟齬がある。本計算のようにセメント/ベントナイト界面で pH 9.5 以上の状態が維持される場合、Sepiolite ではなく、Clinochlore 又は M-S-H を設定することがより現実的な評価であると考えられる。

⑫については、M-S-H の生成量が少なく、液相中の Mg 濃度が高い状態が維持されており、モンモリロナイトの溶解が進行しなかったと考えられる (図 2.3-45)。ただし、M-S-H の熱力学データについては、今回採用したもののほか、Bernard et al. (2017)⁽⁵⁶⁾、Nied et al. (2016)⁽¹⁰⁹⁾が提案したものがあるので、それらとの比較検討も課題である。

透水係数については、両者とも Cell 2 で等価透水係数と比べて高い値となっているが、Cell 3 以降は等価透水係数と同等の値をとっている (図 2.3-47)。

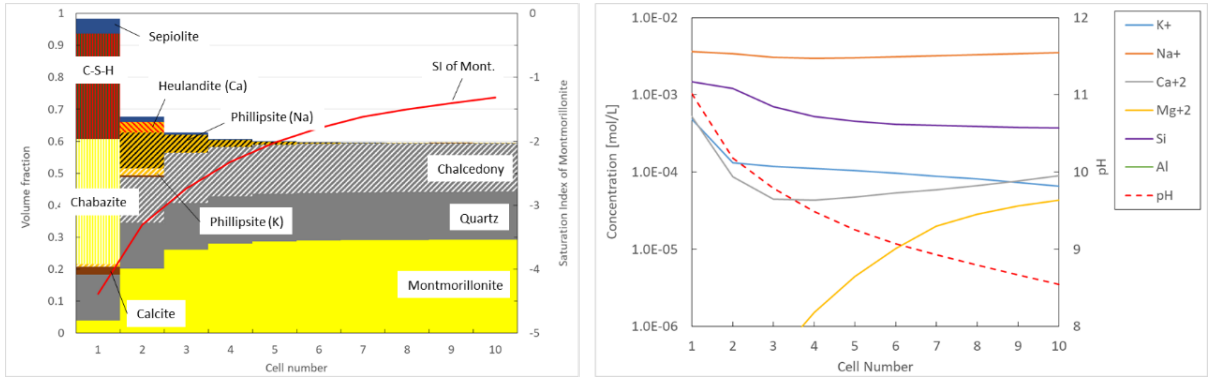


図 2.3-39 ケース 5 ⑪の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

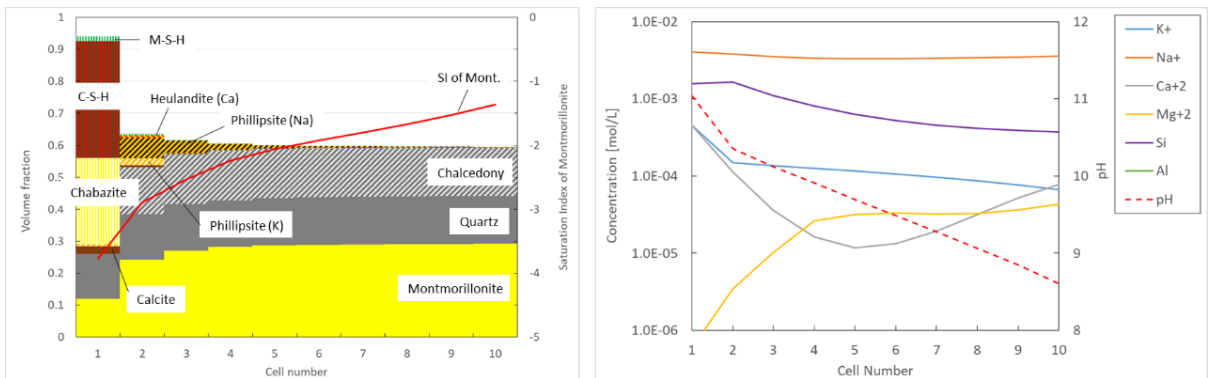


図 2.3-40 ケース 5 ⑫の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

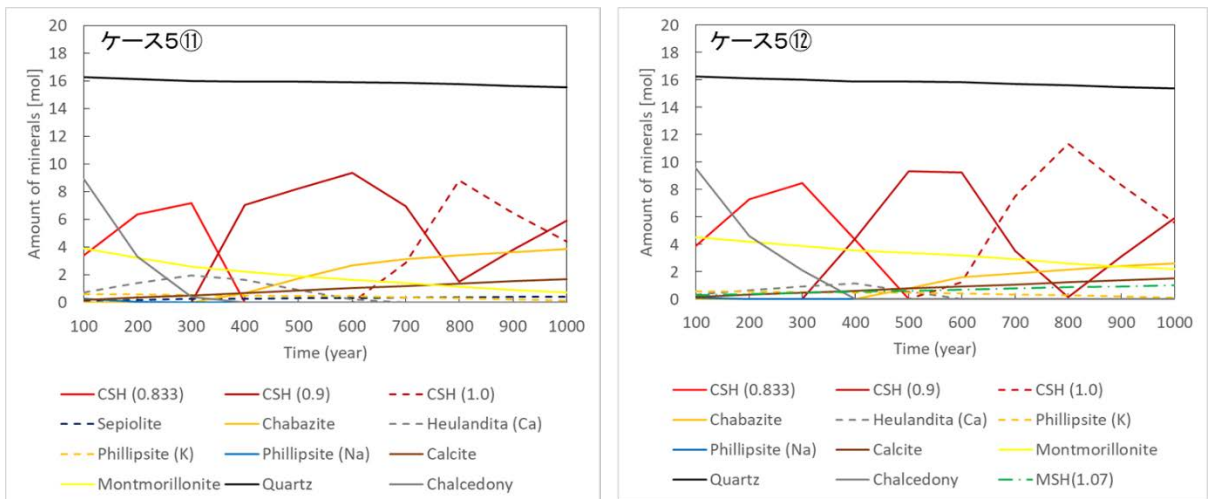


図 2.3-41 ケース 5 ⑪及び⑫の Cell 1 における鉱物の経時変化

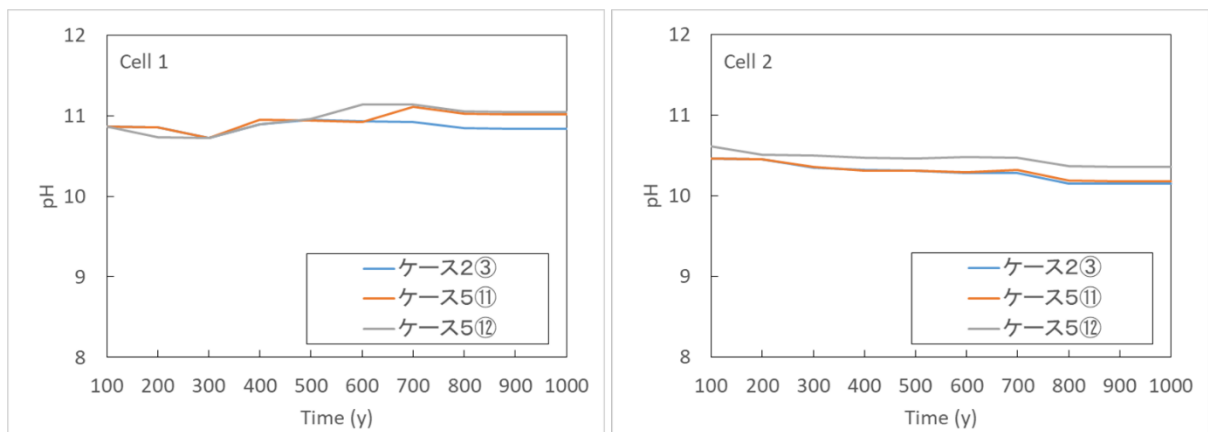


図 2.3-42 ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の pH 経時変化の比較

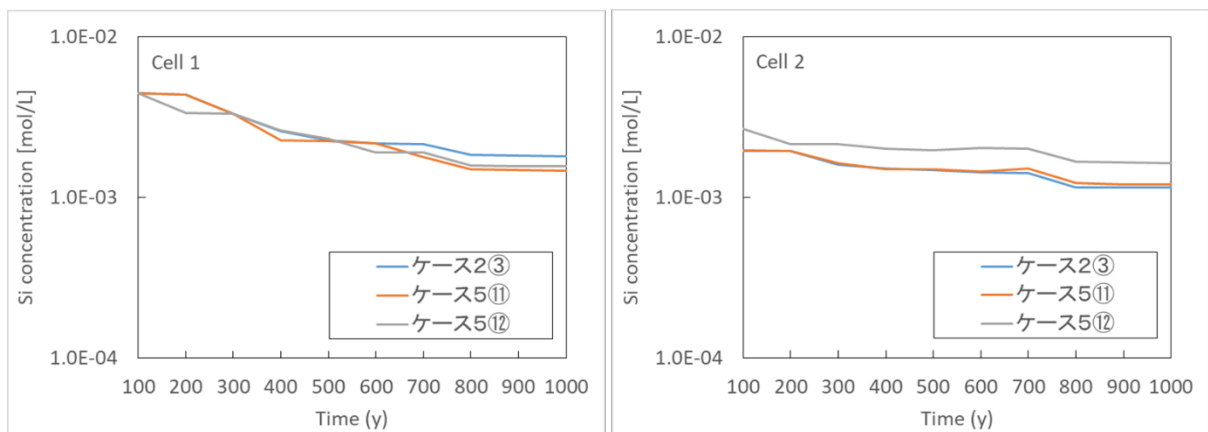


図 2.3-43 ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の Si 濃度経時変化の比較

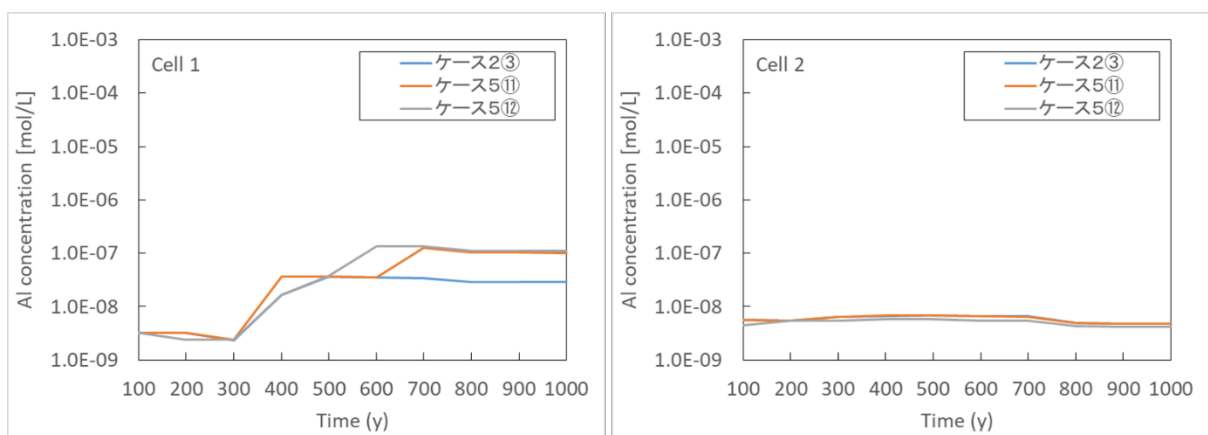


図 2.3-44 ケース 2 ③とケース 5 ⑪、⑫の Al 濃度経時変化の比較

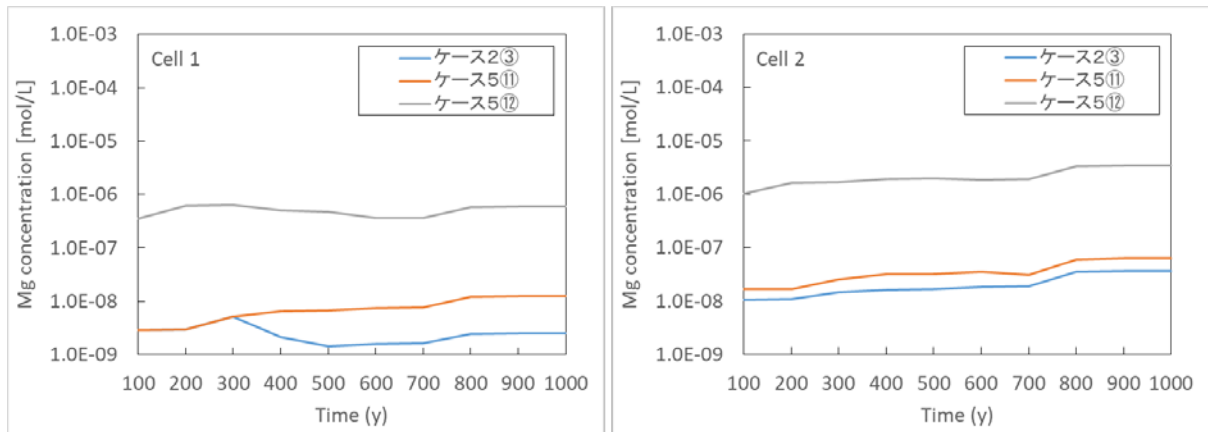


図 2.3-45 ケース 2③とケース 5⑪、⑫の Mg 濃度経時変化の比較

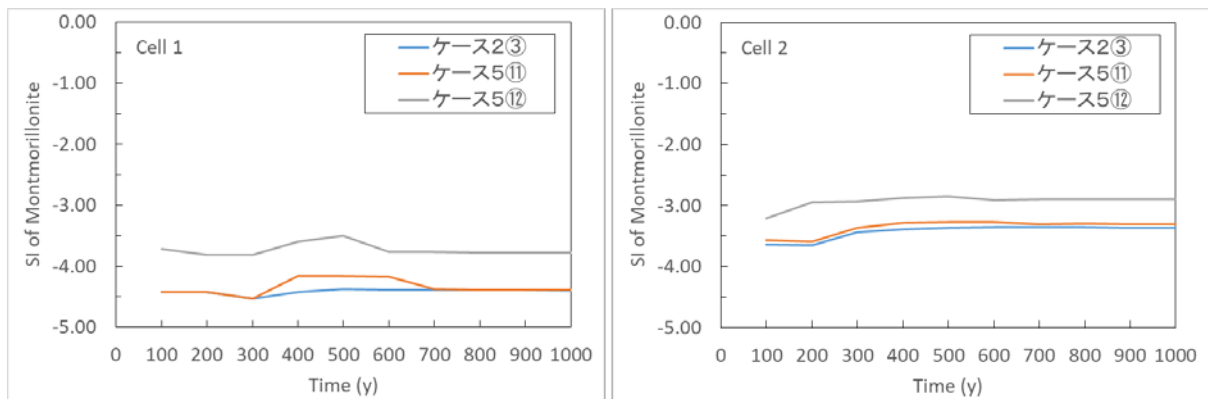


図 2.3-46 ケース 2③とケース 5⑪、⑫の飽和指数 (SI) 経時変化の比較

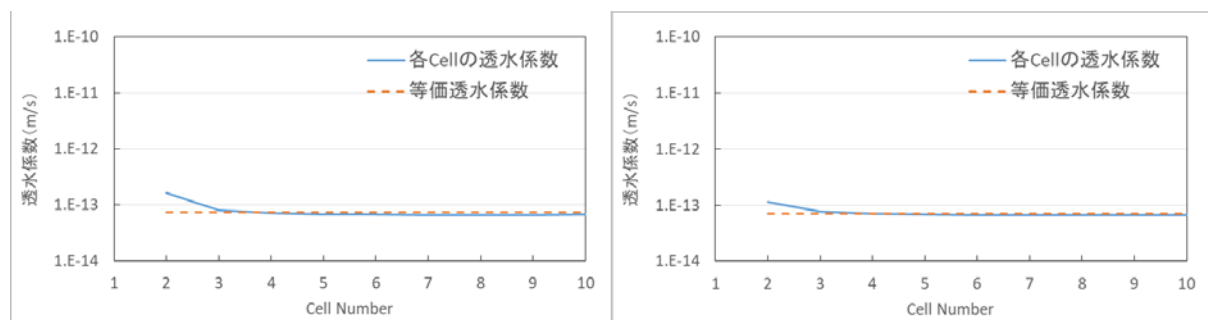


図 2.3-47 ケース 5 の透水係数 (1,000 年後)
(左図：⑪、右図：⑫)

【ケース 6】(使用材料の違いによる影響)

⑬ではケース 1 と比べてモンモリロナイトの溶解量が少なく、二次鉱物の生成量も少ない (図 2.3-48)。1,000 年後の二次鉱物の種類としては、Heulandite (Ca)の生成が多く、ケース 1 で生成が見られた Chabazite は生成しなかった。Cell 1 における鉱物の経時変化を見ると、Chalcedony 及びモンモリロナイトの溶解が徐々に進行し、Heulandite (Ca)及び Calcite の生成量が経時的に増加している (図 2.3-50)。OPC を使用した場合と比べて pH が低く、モンモリロナイトの溶解量が少なかった

ため、液相に供給される Al 量は少ない。一方、Si 量については Chalcedony の溶解により、ゼオライトの生成に必要な量が供給されるため、ゼオライトの生成量は比較的多く見られたと考えられる。また、pH が上昇するとゼオライトの Si/Al 比が低下することが示されており⁽⁶⁷⁾、Chabazite は Si/Al = 2、Heulandite (Ca) は Si/Al = 3.2 であることから、OPC と比べて低い pH である pH10 程度であると、Si/Al 比の小さい Chabazite よりも Si/Al 比の大きい Heulandite (Ca) が生成することは先行研究での報告と整合している (図 2.3-51、図 2.3-52、図 2.3-53)。

⑭ではケース 1 と比較すると、Cell 2 において Heulandite (Ca) の生成が 1,000 年後の鉱物組成として見られたが、その他の二次鉱物の種類は同じであり、Cell 1 における鉱物の経時変化もケース 1 と同様であった。モンモリロナイトの溶解は⑭でケース 1 より進行していた (図 2.3-49)。Cell 1 及び Cell 2 の液相組成に着目すると、⑭の pH、Si 濃度、Al 濃度はケース 1 と同程度又は低い値をとっている (図 2.3-51、図 2.3-52、図 2.3-53)。したがって、⑭がケース 1 よりもモンモリロナイトの溶解が進行している原因の一つとして飽和度の影響による効果が pH の差による影響よりも大きく現れたためと考えられる (図 2.3-54)。また、使用した熱力学データベースにおいて、Na 型モンモリロナイトと Ca 型モンモリロナイトでは加水分解反応の平衡定数に差があり、Na 型モンモリロナイトでは $\text{Log } K = 3.39$ 、Ca 型モンモリロナイトでは $\text{Log } K = 4.21$ となっている。このため、同一の条件であれば、Ca 型モンモリロナイトのほうが溶解しやすいことも、モンモリロナイトの溶解量に差が現れた原因と考えられる。

透水係数については、⑬では Cell 1 で上昇がみられるが、Cell 2 以降は等価透水係数と同等の値である (図 2.3-55)。⑭については、Ca 型ベントナイトであるため、健全部の透水係数についても他のケースよりも高い $3.8 \times 10^{-12} \text{ m/s}$ 程度であるが、Cell 2 では $1.5 \times 10^{-11} \text{ m/s}$ とモンモリロナイトの溶解に伴い透水係数が 1 桁程度上昇している。しかしながら、等価透水係数としては $4.3 \times 10^{-12} \text{ m/s}$ と健全部の透水係数と大きな差異は認められなかった。

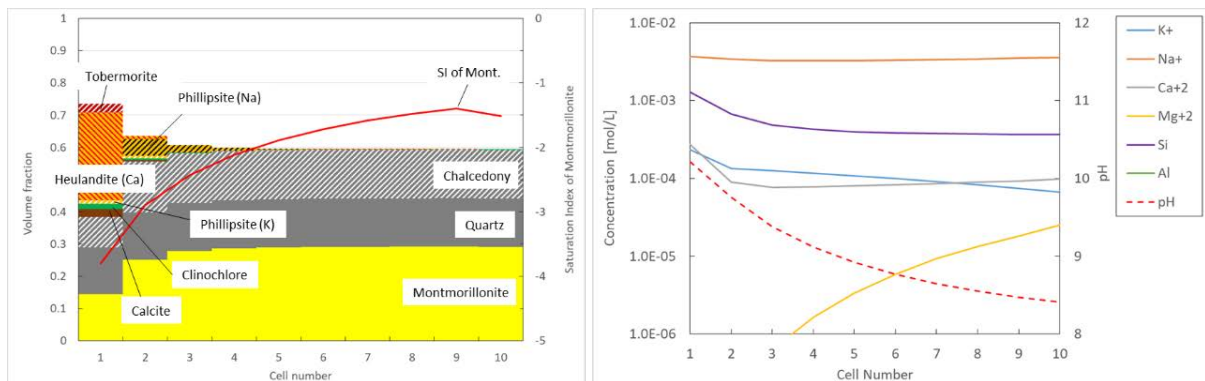


図 2.3-48 ケース 6 ⑬の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

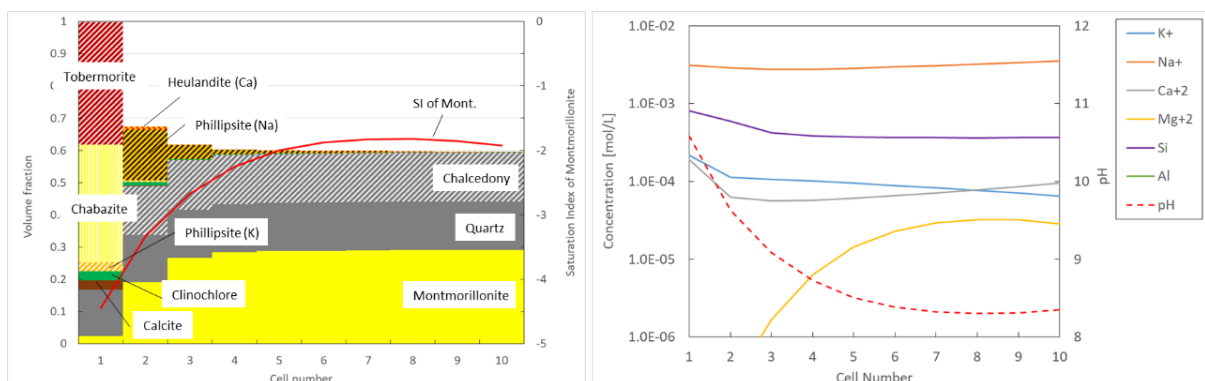


図 2.3-49 ケース 6 ⑭の鉱物の体積割合及び液相組成 (1,000 年後)

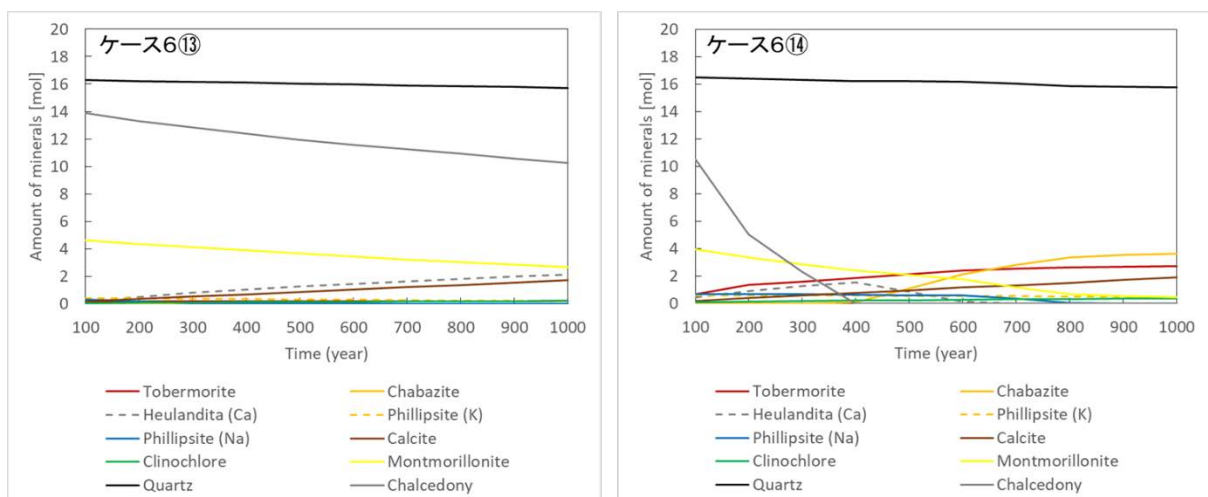


図 2.3-50 ケース 6 ⑬及び⑭の Cell 1 における鉱物の経時変化

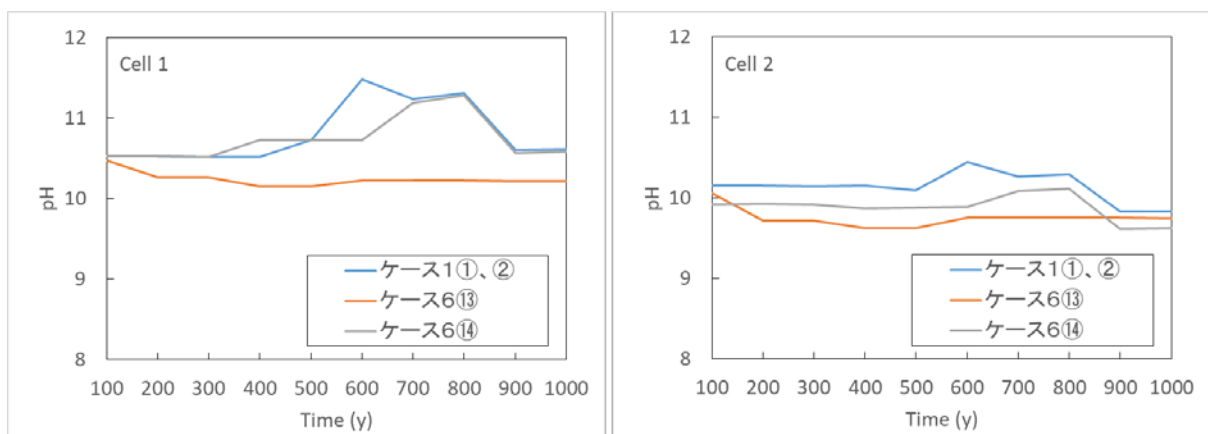


図 2.3-51 ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の pH 経時変化の比較

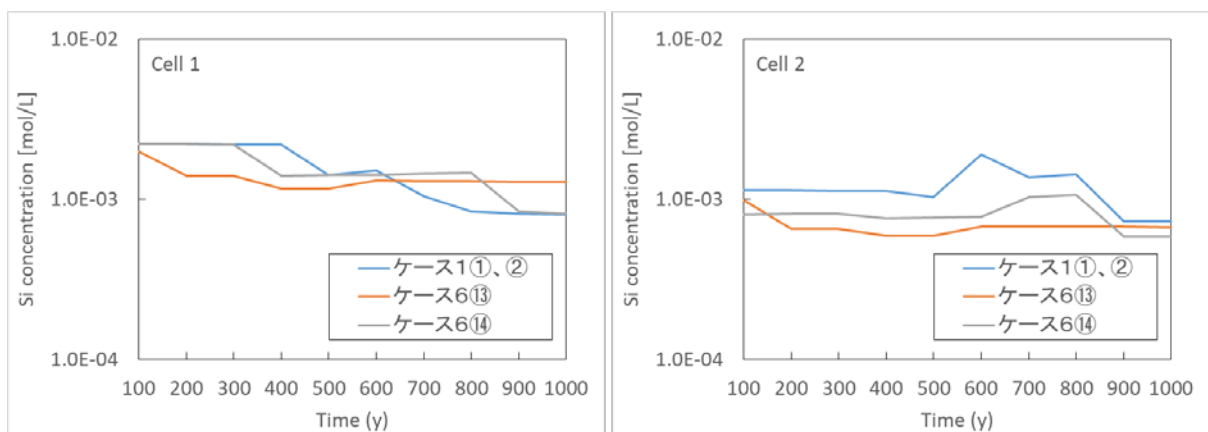


図 2.3-52 ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の Si 濃度経時変化の比較

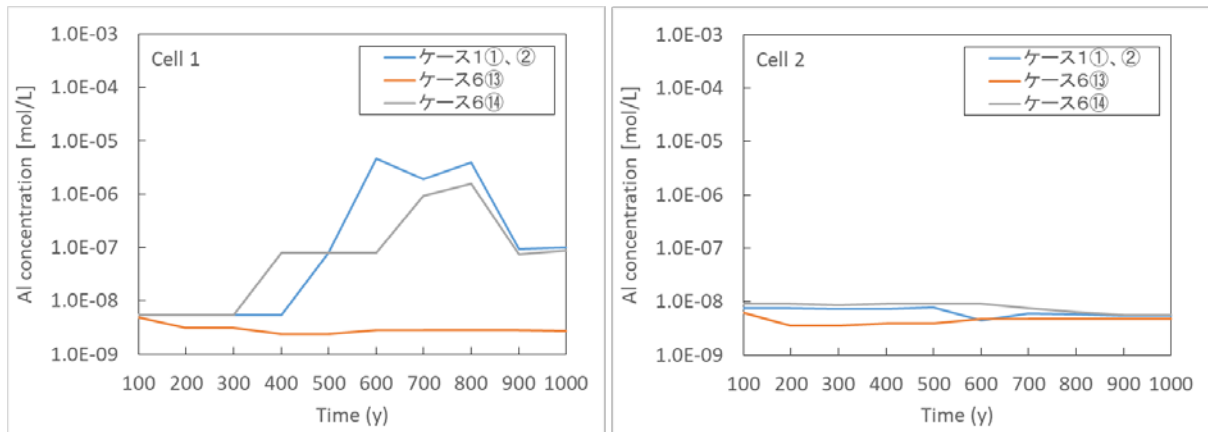


図 2.3-53 ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の Al 濃度経時変化の比較

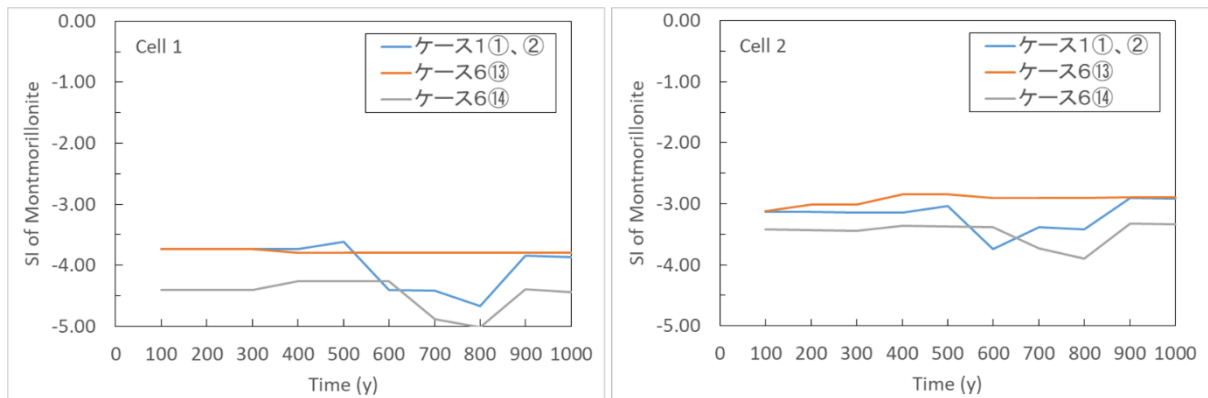


図 2.3-54 ケース 1 ①、②とケース 6 ⑬、⑭の飽和指数 (SI) 経時変化の比較

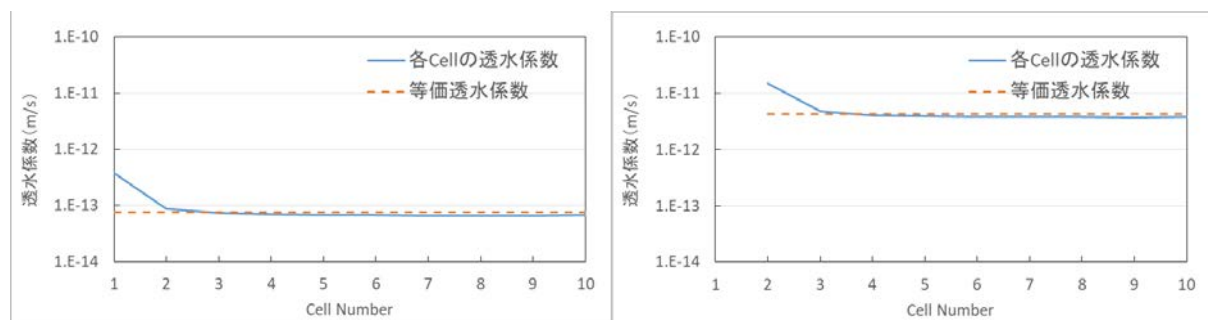


図 2.3-55 ケース 6 の透水係数 (1,000 年後)
(左図 : ⑬、右図 : ⑭)

(6) 計算結果まとめ

ケース 2～5 では、熱力学的な安定性の異なる鉱物を除外した計算を実施した。このうち、ケース 3～5 では、熱力学的に安定性の低い鉱物が生成したことにより、液相の pH 変化及び Si 等の濃度が変化し、モンモリロナイトが平衡に近づいたため、溶解が進行しなかった。一方、ケース 2 では、熱力学的により安定な結晶性の C-S-H を設定したケース 1 よりもモンモリロナイトの溶解が進行した。これは、ケース 3～5 とは反対の挙動である。この原因は、ケース 1 における液相の pH がケース 2 よりも低くなることで、モンモリロナイトの溶解に対する pH の直接的な影響及び飽和度

に対する間接的な影響が小さくなったためと考えられる。このような pH の上昇はケース 3～5 でも見られるが、これらのケースでは pH の上昇による影響よりも、液相の Si 濃度等が高くなることによる飽和度の影響が大きく現れたものと考えられる。したがって、本計算結果は、必ずしも熱力学的に安定な鉱物を設定した場合が保守的な設定にならず、鉱物の生成が液相組成に与える影響が重要であることを示した。

このほか、ベントナイトの変質に対して C-A-S-H ゲルのモデルを導入したが、室内実験等での検証は行っていないため、これについては今後の課題である。

2.3.6 材料／構造設計過程の妥当性判断への本研究成果の反映

上述のとおり、ベントナイト系人工バリアの核種移行抑制に係る主な性能は低透水性であり、その指標の一つである「透水係数」に着目した。しかしながら、当該性能の観点で「優れた」設計であることの妥当性判断を行うに当たっては、単に測定した透水係数が小さいことのみをもって指標とすることはできないと考える。実際に施設を建設する前の事業許可段階における設計の妥当性判断の際に重要なことは、施工方法も含めた材料／構造設計とそれらによって発現する性能との関係が理解され、かつその関係を合理的に説明可能であることである。ベントナイト系人工バリアの透水係数の場合、①どのような材料を選定し、どのような構造設計、どのような方法で施工を行い、②その結果として要求性能である「低透水性」が発現する根源となる初期のモンモリロナイト量、間隙率はどの程度であり、③その状態において周囲の地下水が浸透してきたときの透水係数はどの程度となり、④その後の鉱物反応（溶解、生成、沈殿）に伴ってモンモリロナイト量、間隙率、間隙水組成はどのように変遷し、⑤その変遷に伴って透水係数はどの程度変化するのか、といった設計に係るプロセスとの関係も含めた合理的な説明が不可欠と考えられる。本年度実施した二次鉱物リストの検討や設定する二次鉱物の違いによる低透水性への影響は、初期材料の設定、鉱物反応の進展に伴い変化する鉱物／間隙水組成や細孔構造の設定、状態設定（「科学的に最も可能性が高い状態」及び「保守的なパラメータを設定した状態」）の妥当性判断に寄与するものである。

2.3.7 まとめ・今後の課題

本事業では、鉱物設定の妥当性判断のための知見、核種移行抑制性能への影響の程度に関する知見及び地球化学計算を行う際に留意すべき事項を整備することを目的として、以下を実施した。

国内外の機関等で設定された鉱物モデル及び最新知見の文献調査を行い、二次鉱物の生成・沈殿に係る情報を整理した。文献調査から抽出した二次鉱物リストについて、中深度処分を想定し、作成した二次鉱物を分類する手順に従い、(i) 設定しない鉱物、(ii) 設定する鉱物、(iii) 地球化学計算により、鉱物設定が透水性に与える影響について検討する鉱物（影響検討鉱物）に分類した。これにより、従来モデルにおいて二次鉱物として設定していた Laumontite は構造が類似であり、熱力学的により安定な Chabazite を設定することにより、設定は不要である等の結果を得た。

また、影響検討鉱物に分類した鉱物について、鉱物の設定の違いがモンモリロナイトの溶解及び透水係数に与える影響を地球化学計算を用いて検討した。この際、これまでベントナイトの変質評価において考慮されていなかった C-A-S-H ゲルを考慮したモデルを導入した。その結果、C-(A-)S-H ゲルを設定した場合、熱力学的により安定な Tobermorite を設定した場合よりもモンモリロナイトの溶解が進行することが明らかになり、C-(A-)S-H 型鉱物の設定の重要性が示された。このことは、熱力学的に安定な鉱物を設定することが必ずしも保守的な設定にはならないことに留意が必要であることを示した。

今後の課題としては、

- 今回設定した二次鉱物リストを用いて、ベントナイト中における間隙率の変化が拡散係数に与える影響を考慮した計算の実施
- 今回設定した二次鉱物リストを用いて、C-A-S-H 生成モデルの適用性も含め、実験の結果やナチュラルアナログとの整合性の検討があげられる。

第2章の参考文献

- (1) Kulik D.A., Wagner T., Dmytrieva S.V., Kosakowski G., Hingerl F.F., Chudnenko K.V., Berner U.: GEM-Selektor geochemical modeling package: revised algorithm and GEMS3K numerical kernel for coupled simulation codes. *Computational Geosciences* 17 (2013) 1–24.
- (2) Wagner T., Kulik D.A., Hingerl F.F., Dmytrieva S.V.: GEM-Selektor geochemical modeling package: TSolMod library and data interface for multicomponent phase models. *Canadian Mineralogist* 50 (2012) 1173–1195.
- (3) Nishi F., Takeuchi Y., Maki I.: Tricalcium silicate $\text{Ca}_3\text{O}[\text{SiO}_4]$: The monoclinic superstructure. *Zeitschrift für Kristallographie* 172 (1985) 297–314.
- (4) Mumme W.G., Hill R.J., Bushnell-Wye G., Segnit E.R.: Rietveld crystal structure refinements, crystal chemistry and calculated powder diffraction data for the polymorphs of dicalcium silicate and related phases. *Neues Jahrbuch fuer Mineralogie - Abhandlungen* 169 (1995) 35–68.
- (5) Mondal P., Jeffery J.W.: The crystal structure of tricalcium aluminate, $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$. *Acta Crystallographica B* 31 (1975) 689–697.
- (6) Colville A.A., Geller S.: The crystal structure of brownmillerite, $\text{Ca}_2\text{FeAlO}_5$. *Acta Crystallographica B* 27 (1971) 2311–2315.
- (7) Pedersen B.F., Semmingsen D.: Neutron diffraction refinement of the structure of gypsum, $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. *Acta Crystallographica B* 38 (1982) 1074–1077.
- (8) Bezou C., Christensen A.N., Cox D., Lehmann M., Nonat A.: Structures cristallines de $\text{CaSO}_4 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$ et $\text{CaSO}_4 \cdot 0.6\text{H}_2\text{O}$. *Comptes Rendus de l'Academie des Sciences Série II* 312 (1991) 43–48.
- (9) Natta G., Passerini L.: Soluzioni solide, isomorfismo e simmorfismo tra gli ossidi dei metallic bivalenti. – 1. Sistemi: $\text{CaO}-\text{CdO}$, $\text{CaO}-\text{MnO}$, $\text{CaO}-\text{CoO}$, $\text{CaO}-\text{NiO}$, $\text{CaO}-\text{MgO}$. *Gazzetta Chimica Italiana* 59 (1929) 129–154.
- (10) Hazen R.M.: Effects of temperature and pressure on the cell dimension and X-ray temperature factors of periclase. *American Mineralogist* 61 (1976) 266–271.
- (11) 庭瀬一仁: 混和材料利用の現状. 混和材料を使用したコンクリートの物性評価技術と性能規定型材料設計に関する研究小委員会 (353委員会) 成果報告書, 土木学会 (2018).
- (12) 山本武志: 混和材料利用の積極的な利用事例. 混和材料を使用したコンクリートの物性評価技術と性能規定型材料設計に関する研究小委員会 (353委員会) 成果報告書, 土木学会 (2018).
- (13) 上野淳一: フライアッシュ利用の実態調査 生産システムの現状. 混和材料を使用したコンクリートの物性評価技術と性能規定型材料設計に関する研究小委員会 (353委員会) 成果報告書, 土木学会 (2018).
- (14) Will G., Bellotto M., Parrish W., Hart M.: Crystal structures of quartz and magnesium germinate by profile analysis of synchrotron-radiation high-resolution powder data. *Journal of Applied Crystallography* 21 (1988) 182–191.
- (15) Angel R.J., Prewit C.T.: Crystal structure of mullite A re-examination of the average structure. *American Mineralogist* 71 (1986) 1476–1482.
- (16) Montoro V.: Miscibilità fra gli ossidi salini di ferro e di manganese. *Gazzetta Chimica Italiana* 68 (1938) 728–733.
- (17) Tsirelson V.G., Antipin M.Y., Gerr R.G., Ozerov R.P., Struchkov Y.T.: Ruby structure peculiarities

- derived from X-ray diffraction data localization of chromium atoms and electron deformation density. *Physica Status Solidi (a)* 87 (1985) 425–433.
- (18) Lothenbach B., Kulik D.A., Matschei T., Balonis M., Baquerizo L., Dilnesa B., Miron G.D., Myers R.J.: Cemdata18: A chemical thermodynamic database for hydrated Portland cements and alkali-activated materials. *Cement and Concrete Research* 115 (2019) 472–506.
 - (19) Stutzman P., Leigh S.: Phase composition analysis of the NIST reference clinker by optical microscopy and X-ray powder diffraction. NIST Technical Note 1441 (2002).
 - (20) Gartner E., Maruyama I., Chen J.: A new model for the C-S-H phase formed during the hydration of Portland cements. *Cement and Concrete Research* 97 (2017) 95–106.
 - (21) 郭度連. 水銀圧入ポロシメーターによる空隙構造. 混和材料を使用したコンクリートの物性変化と性能評価研究小委員会 (333委員会) 報告書, 土木学会 (2007).
 - (22) 入江正明: 中性子散乱法による分析. 混和材料を使用したコンクリートの物性変化と性能評価研究小委員会 (333委員会) 報告書, 土木学会 (2007).
 - (23) 小泉公志郎: ケイ酸アニオンの形態分析 (NMR法・TMS法). 混和材料を使用したコンクリートの物性変化と性能評価研究小委員会 (333委員会) 報告書, 土木学会 (2007).
 - (24) Pardal X., Brunet F., Charpentier T., Pochard I., Nonat A.: ²⁷Al and ²⁹Si solid-state NMR characterization of calcium-aluminosilicate-hydrate. *Inorganic Chemistry* 51 (2012) 1827–1836.
 - (25) L'Hôpital E., Lothenbach B., Le Saout G., Kulik D., Scrivener K.: Incorporation of aluminum in calcium-silicate-hydrates. *Cement and Concrete Research* 75 (2015) 91–103.
 - (26) 独立行政法人日本原子力研究開発機構, 平成 21 年度放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査報告書, (2010).
 - (27) 独立行政法人日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 [安全審査に向けた評価手法の整備] 報告書, (2014).
 - (28) 小田治恵, 本田明, 高瀬博康, 小曾根健嗣, 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 (2013) 34-49.
 - (29) 公益財団法人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關する技術開発事業 T R U 廃棄物処理・処分技術高度化開発報告書, (2018).
 - (30) P. Cronstrand, Long-term performance of the bentonite barrier in the SFR silo, SKB Technical Report TR-15-08. (2016) 46.
 - (31) J. Lehtikoinen, Bentonite-Cement Interaction – Preliminary Results from Model Calculations, POSIVA Working Report 2009-37. (2009).
 - (32) N.C.M. Marty, C. Tournassat, A. Burnol, E. Giffaut, E.C. Gaucher, Influence of reaction kinetics and mesh refinement on the numerical modelling of concrete/clay interactions, *Journal of Hydrology*. 364 (2009) 58–72.
 - (33) M.H. Bradbury, U. Berner, E. Curti, W. Hummel, G. Kosakowski, T. Thoenen, The Long Term Geochemical Evolution of the Nearfield of the HLW Repository, NAGRA Technical Report 12-01. (2014).
 - (34) 横山信吾, 中村邦彦, 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 1) —アルカリ性の各種溶液に浸漬した締固めベントナイトの鉱物学的な変質と透水性の変化—, 電力中央研究所報告 研究報告 : N09015. (2010).
 - (35) F. Rassineux, L. Griffault, A. Meunier, G. Berger, S. Petit, P. Vieillard, R. Zellagui, M. Munoz,

- Expandability- layer stacking relationship during experimental alteration of a Wyoming bentonite in pH 13.5 solutions at 35 and 60°C, *Clay Minerals*. 36 (2001) 197–210.
- (36) D. Savage, D. Noy, M. Mihara, Modelling the interaction of bentonite with hyperalkaline fluids, *Applied Geochemistry*. 17 (2002) 207–223.
- (37) R. Fernández, D. González-Santamaría, M. Angulo, E. Torres, A.I. Ruiz, M.J. Turrero, J. Cuevas, Geochemical conditions for the formation of Mg silicates phases in bentonite and implications for radioactive waste disposal, *Applied Geochemistry*. 93 (2018) 1–9.
- (38) 小田治恵, 佐々木良一, D. Savage, R.C. Arthur, 本田明, 緩衝材の鉱物学的長期変遷シナリオ, 核燃料サイクル開発機構 JNC TN8400 2005-020. (2005).
- (39) D.D. Eberl, B. Velde, T. McCormick, Synthesis of illite-smectite from smectite at earth surface temperatures and high pH, *Clay Minerals*. 28 (1993) 49–60.
- (40) G.W. Brindley, Ethylene glycol and glycerol complexes of smectites and vermiculites, *Clay Minerals*. 6 (1966) 237–259.
- (41) 独立行政法人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 T R U 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).
- (42) 独立行政法人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 T R U 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, (2013).
- (43) 独立行政法人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).
- (44) A.C. Olis, P.B. Malla, L.A. Douglas, The rapid estimation of the layer charges of 2:1 expanding clays from a single alkylammonium ion expansion, *Clay Minerals*. 25 (1990) 39–50.
- (45) T. Watanabe, the Structural Model of Illite/Smectite Interstratified Mineral and the Diagram for Its Identification, *Clay Science*. 7 (1988) 97–114.
- (46) T. Sato, T. Murakami, T. Watanabe, Change in layer charge of smectite and smectite layers in illite/smectite during diagenetic alteration, *Clays and Clay Minerals*. 44 (1996) 460–469.
- (47) T. Sato, T. Watanabe, R. Otsuka, Effects of layer charge, charge location, and energy charge on expansion properties of dioctahedral smectites, *Clays and Clay Minerals*. 40 (1992) 103–113.
- (48) F. Huertas, J. Farias, L. Griffault, S. Leguey, J. Cuevas, S. Ramirez, R. Vigil de la Villa, J. Cobena, C. Andrade, M.C. Alonso, A. Hidalgo, J.C. Parneix, F. Rassineux, A. Bouchet, A. Meunier, A. Decarraeau, S. Petit, P. Vieillard, Effects of cement on clay barrier performance, Final Report, Ecoclay Project. European Commission, Nuclear Science and Technology. (2000).
- (49) 財団法人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 TRU 廃棄物関連処分技術調査—人工バリア長期性能確認試験—報告書, (2005).
- (50) 大塚良平, 下田右, 下坂康哉, 永田洋, 篠原也寸志, 清水雅浩, 坂本尚史, セピオライトの産状と鉱物学的性質, *粘土科学*. 32 (1992) 154–172.
- (51) N.J. Tosca, A.L. Masterson, Chemical controls on incipient Mg-silicate crystallization at 25°C: Implications for early and late diagenesis, *Clay Minerals*. 49 (2014) 165–194.
- (52) A. Baldermann, V. Mavromatis, P.M. Frick, M. Dietzel, Effect of aqueous Si/Mg ratio and pH on the nucleation and growth of sepiolite at 25 °C, *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 227 (2018) 211–226.
- (53) S. Guggenheim, M.P.S. Krekeler, The structures and microtextures of the palygorskite-sepiolite group minerals, pp. 3–32 in: *Developments in Palygorskite-Sepiolite Research* (E. Galan & A. Singer, editors) , 1st ed., Elsevier B.V., 2011.

- (54) R. Fernández, R. Vigil de la Villa, A.I. Ruiz, R. García, J. Cuevas, Precipitation of chlorite-like structures during OPC porewater diffusion through compacted bentonite at 90°C, *Applied Clay Science*. 83–84 (2013) 357–367.
- (55) M. Shimbashi, T. Sato, M. Yamakawa, N. Fujii, T. Otake, Formation of Fe-and Mg-rich smectite under hyperalkaline conditions at narra in Palawan, the Philippines, *Minerals*. 8 (2018).
- (56) E. Bernard, B. Lothenbach, C. Cau-Dit-Coumes, C. Chlique, A. Dauzères, I. Pochard, Magnesium and calcium silicate hydrates, Part I: Investigation of the possible magnesium incorporation in calcium silicate hydrate (C-S-H) and of the calcium in magnesium silicate hydrate (M-S-H), *Applied Geochemistry*. 89 (2018) 229–242.
- (57) 西木悠人, 新橋美里, 佐藤努, 大竹翼, 天然アルカリ環境において生成した低結晶質マグネシウムケイ酸塩の観察とフロースルー実験, 日本地球惑星科学連合 2019 年大会. MIS10-08 (2019).
- (58) J.C. Alt, J. Honnorez, C. Laverne, R. Emmermann, Hydrothermal alteration of a 1 km section through the upper oceanic crust, Deep Sea Drilling Project Hole 504B: Mineralogy, chemistry and evolution of seawater-basalt interactions, *Journal of Geophysical Research*. 91 (1986) 309–335.
- (59) 原口悟, 藤永公一郎, 中村謙太郎, 山口飛鳥, 石井輝秋, SEM-EDS を用いたマッピング分析で解析する四国海盆北部 IODP EXP333 C0012 基盤岩のアルカリ元素濃集作用, 日本地球惑星科学連合 2016. SCG59-28 (2016) 2016.
- (60) R.J. Donahoe, J.G. Liou, B.S. Hemingway, Thermochemical data for merlinoite: 2. Free energies of formation at 298.15 K of six synthetic samples having various Si/Al and Na/(Na+K) ratios and application to saline, alkaline lakes, *American Mineralogist*. 75 (1990) 201–208.
- (61) 竹村友之, 横本誠一, 藤原愛, 勝山邦久, 模擬海中でのコンクリートの劣化現象, コンクリート工学年次論文報告集. 15 (1993) 823–828.
- (62) R. Fernández, U.K. Mäder, M. Rodríguez, R. Vigil de la Villa, J. Cuevas, Alteration of compacted bentonite by diffusion of highly alkaline solutions, *European Journal of Mineralogy*. 21 (2009) 725–735.
- (63) 松田博貴, ドロマイト化作用と貯留岩性状, *地学雑誌*. 118 (2009) 297–308.
- (64) E. Usdowski, Synthesis of Dolomite and Magnesite at 60°C in the System Ca²⁺-Mg²⁺-CO₂-H₂O, *Naturwissenschaften*. 76 (1989) 374–375.
- (65) 中林亮, 木嶋達也, 塚田康元, 佐藤努, 大竹翼, 金子勝比古, 米田哲朗, 高アルカリ環境における圧縮ベントナイト中のシリカ鉱物の溶解; X線CT観察および地球化学モデリングによる定量的評価, *粘土科学*. 52 (2013) 9–22.
- (66) J. Cuevas, R. Vigil de la Villa, S. Ramírez, L. Sánchez, R. Fernández, S. Leguey, The alkaline reaction of FEBEX bentonite: a contribution to the study of the performance of bentonite/concrete engineered barrier systems, *Journal of Iberian Geology*. 32 (2006) 151–174.
- (67) R. Vigil de la Villa, J. Cuevas, S. Ramírez, S. Leguey, Zeolite formation during the alkaline reaction of bentonite, *European Journal of Mineralogy*. 13 (2001) 635–644.
- (68) S. Ramírez, J. Cuevas, R. Vigil, S. Leguey, Hydrothermal alteration of “La Serrata” bentonite (Almería, Spain) by alkaline solutions, *Applied Clay Science*. 21 (2002) 257–269.
- (69) S. Nakayama, Y. Sakamoto, T. Yamaguchi, M. Akai, T. Tanaka, T. Sato, Y. Iida, Dissolution of montmorillonite in compacted bentonite by highly alkaline aqueous solutions and diffusivity of hydroxide ions, *Applied Clay Science*. 27 (2004) 53–65.
- (70) 公益財団法人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, (2014).
- (71) D. Savage, C. Walker, R. Arthur, C. Rochelle, C. Oda, H. Takase, Alteration of bentonite by hyperalkaline fluids: A review of the role of secondary minerals, *Physics and Chemistry of the Earth*. 32 (2007) 287–297.
- (72) S. Ramírez, P. Vieillard, A. Bouchet, A. Cassagnabere, A. Meunier, E. Jacquot, Alteration of the Callovo – Oxfordian clay from Meuse-Haute Marne underground laboratory (France) by alkaline solution . I . A XRD and CEC study, *Applied Geochemistry*. 20 (2005) 89–99.
- (73) G. Berger, J. Schott, C. Guy, Behavior of Li, Rb and Cs during basalt glass and olivine dissolution and chlorite, smectite and zeolite precipitation from seawater: Experimental investigations and modelization between 50° and 300°C, *Chemical Geology*. 71 (1988) 297–312.
- (74) 独立行政法人日本原子力研究開発機構, 平成 18 年度放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査報告書(確率論的アプローチによる長期的評価手法の調査), (2007).
- (75) R.L. Hay, S.G. Guldman, Diagenetic Alteration of Silicic Ash in Searles Lake, California., *Clays and Clay Minerals*. 35 (1987) 449–457.
- (76) R. Fernández, J. Cuevas, M. Rodríguez, R. Vigil de la Villa, M.A. CUÑADO, The stability of zeolites and C-S-H in the high pH reaction of bentonite, A Workshop Organised by the OECD/NEA Integration Group for the Safety Case. NEA/RWM/R((2012).
- (77) 公益財団法人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, (2016).
- (78) 佐藤久夫, 高沢真由美, 林大介, 井田雅也, 高アルカリ条件下の圧縮ベントナイトからのゼオライト核形成の直接観察, 日本地球惑星科学連合 2019 年大会. MIS10-P06 (2019).
- (79) S. Shaw, S.M. Clark, C.M.B. Henderson, Hydrothermal formation of the calcium silicate hydrates, tobermorite ($\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) and xonotlite ($\text{Ca}_6\text{Si}_6\text{O}_{17}(\text{OH})_2$): an in situ synchrotron study, *Chemical Geology*. 167 (2000) 129–140.
- (80) J.R. Houston, R.S. Maxwell, S.A. Carroll, Transformation of meta-stable calcium silicate hydrates to tobermorite: reaction kinetics and molecular structure from XRD and NMR spectroscopy, *Geochemical Transactions*. 10 (2009).
- (81) 原子力発電環境整備機構, 放射性廃棄物管理のためのアナログカタログ (和訳版) , NUMO-TR-19-01. (2019).
- (82) A.E. Milodowski, C.A. Rochelle, A. Lacinska, D. Wagner, A natural analogue study of CO₂-cement interaction: Carbonation of calcium silicate hydrate-bearing rocks from Northern Ireland, *Energy Procedia*. 4 (2011) 5235–5242.
- (83) 須藤儀一, 110°Cにおける CaO-Silica gel-H₂O 系の反応と生成物, *Journal of the Ceramic Association, Japan*. 69 (1961) 401–409.
- (84) G. MI, F. Saito, M. Hanada, Mechanochemical synthesis of afwillite by room temperature grinding, *Inorganic Materials*. 3 (1996) 587–591.
- (85) 公益財団法人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委託費 TRU 廃棄物処分技術人工バリア長期性能評価技術開発報告書, (2011).
- (86) S. Gaboreau, D. Prêt, E. Tinsseau, F. Claret, D. Pellegrini, D. Stammose, 15 years of in situ cement-argillite interaction from Tournemire URL: Characterisation of the multi-scale spatial heterogeneities of pore space evolution, *Applied Geochemistry*. 26 (2011) 2159–2171.
- (87) R. Fernández, A.I. Ruiz, J. Cuevas, Formation of C-A-S-H phases from the interaction between concrete or cement and bentonite, *Clay Minerals*. 51 (2016) 223–235.

- (88) I. Maruyama, G. Igarashi, Cement reaction and resultant physical properties of cement paste, *Journal of Advanced Concrete Technology*. 12 (2014) 200–213.
- (89) 石川玲奈, 名和豊春, 植田晃平, 梶尾知広, 熱力学平衡論に基づく C3A-Gypsum-Portlandite 系の水和反応解析, *セメント・コンクリート論文集*. 70 (2016) 104-110.
- (90) B. Lothenbach, F. Winnefeld, Thermodynamic modelling of the hydration of Portland cement, *Cement and Concrete Research*. 36 (2006) 209–226.
- (91) H.G. Midgley, P.B. Rao, Formation of stratlingite, $2\text{CaO}\cdot\text{SiO}_2\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3\text{H}_2\text{O}$, in relation to the hydration of high alumina cement, *CEMENT and CONCRETE RESEARCH*. 8 (1978) 169–172.
- (92) 新名俊夫, Crystallization of Stratlingite in High Alumina Cement Hydrates with Silica Fume at Different Curing Temperatures and Terms, 広島大学学位請求論文. (2016).
- (93) V.L. Bonavetti, V.F. Rahhal, E.F. Irassar, Studies on the carboaluminate formation in limestone filler-blended cements, *Cement and Concrete Research*. 31 (2001) 853–859.
- (94) L. Black, C. Breen, J. Yarwood, C.S. Deng, J. Phipps, G. Maitland, Hydration of tricalcium aluminate (C3A) in the presence and absence of gypsum - Studied by Raman spectroscopy and X-ray diffraction, *Journal of Materials Chemistry*. 16 (2006) 1263–1272.
- (95) 梶尾知広, 森永祐加, Y. Elakneswaran, 名和豊春, C3A の水和反応に及ぼす Portlandite の影響, *セメント・コンクリート論文集*. 71 (2017) 40-47.
- (96) 寺戸政成, 須田裕哉, 斎藤豪, 佐伯竜彦, カルシウムアルミネート系水和物を考慮したセメント硬化体の比表面積の推定方法に関する基礎的研究, *セメント・コンクリート論文集*. 66 (2012) 197-204.
- (97) H.E. Schwiete, U. Ludwig, P. Jäger, Investigations in the System $3\text{CaO}\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CaSO}_4\text{-CaO-H}_2\text{O}$, *Highway Research Board Special Report*. (1966) 353–367.
- (98) 畠山葵, 黒澤利仁, 栗村友貴, 名和豊春, アルミネート相の水和反応解析—熱力学的平衡論による検証—, *セメント・コンクリート論文集*. 67 (2013) 79-86.
- (99) 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—, (1999).
- (100) 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).
- (101) S. Yokoyama, M. Kuroda, T. Sato, Atomic force microscopy study of montmorillonite dissolution under highly alkaline conditions, *Clays and Clay Minerals*. 53 (2005) 147–154.
- (102) D.L. Parkhurst, C.A.J. Appelo, Description of Input and Examples for PHREEQC Version 3 — A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations, (2013).
- (103) A. Atkinson, J.A. Hearne, C.F. Knights, Aqueous chemistry and thermodynamic modeling of $\text{CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$ gels, AERE R 12548, UK AEA. (1987).
- (104) A. Atkinson, J.A. Hearne, C.F. Knights, Aqueous chemistry and thermodynamic modeling of $\text{CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$ gels at 80 °C, DOE/HMIP/91/045. (1991).
- (105) 須田裕哉, 佐伯竜彦, 斎藤豪, C-S-H の組成がゲル空隙の量およびゲル空隙の空隙径分布に及ぼす影響, *土木学会論文集 E2 (材料・コンクリート構造)*. 70 (2014) 134-152.
- (106) R.J. Myers, S.A. Bernal, J.L. Provis, A thermodynamic model for C-(N-)A-S-H gel: CNASH-ss. Derivation and validation, *Cement and Concrete Research*. 66 (2014) 27–47.
- (107) Y. Elakneswaran, E. Owaki, S. Miyahara, M. Ogino, T. Maruya, T. Nawa, Hydration study of slag-blended cement based on thermodynamic considerations, *Construction and Building Materials*. 124

- (2016) 615–625.
- (108) C. Roosz, P. Vieillard, P. Blanc, S. Gaboreau, H. Gailhanou, D. Braithwaite, V. Montouillout, R. Denoyel, P. Henocq, B. Madé, Thermodynamic properties of C-S-H, C-A-S-H and M-S-H phases: Results from direct measurements and predictive modelling, *Applied Geochemistry*. 92 (2018) 140–156.
- (109) D. Nied, K. Enemark-Rasmussen, E. L'Hopital, J. Skibsted, B. Lothenbach, Properties of magnesium silicate hydrates (M-S-H), *Cement and Concrete Research*. 79 (2016) 323–332.

3. 天然バリアにおける核種移行評価手法の整備

3.1 はじめに

中深度処分の廃棄物埋設地の位置に関する設計については、合理的に設置可能な区域から、水理地質構造、地球物理・地球化学的環境等を踏まえて、廃棄物埋設地から生活圏への主要な放射性核種の移行を抑制する性能に優れた地盤が選定され、規制側は選定区域に廃棄物埋設地を設置した場合の性能評価の妥当性を適切に評価することが求められる。そこで、天然バリアの長期にわたる核種移行に係る性能評価の妥当性を判断するために必要な科学的・技術的知見を取得する観点から、「中深度処分の廃棄物埋設を対象とした地形変化・地下水流動・核種移行解析」および「上北地域を対象とした評価に向けた調査」を行った。

「中深度処分の廃棄物埋設を対象とした地形変化・地下水流動・核種移行解析」では、「諸外国の既往情報に基づく評価手法の検討」、「広域における地形変化・地下水流動・核種移行解析」、および、「ニアフィールドにおける地下水流動解析」の3つの検討を行った。

「諸外国の既往情報に基づく評価手法の検討(3.2)」では、廃棄物埋設の安全評価等に関する諸外国の既往情報を調査・整理するとともに、調査結果を基にわが国の中深度処分の沿岸立地を想定した際の地形変化・地下水流動・核種移行の各評価における基本的考え方について整理した。

「広域における地形変化・地下水流動・核種移行解析(3.3)」では、廃棄物埋設地を設置した場合の天然バリアに係る性能評価の妥当性を適切に評価するための科学的・技術的知見を取得することを目的として、地形変化・地下水流動・核種移行の各評価を実施した。地形変化評価(3.3.2)では、まず山地、河川、平野、海域から構成されるわが国の典型的な集水域に対し、地形変化及び海水準変動に関する入力パラメータ及び拘束条件としての不確かさを考慮した将来の地形変化評価の方法論を整理した。その方法論に基づき、同地域において不確かさを考慮した過去～現在～将来の地形変化評価を行い、不確かさが地形変化に与える影響、および、埋設深度の減少の少ない地形条件の特徴を分析した。地下水流動解析(3.3.3)では、地形変化評価の結果から選定した複数ケースに対し現在～将来の地下水流動解析を実施し、不確かさが流動場に与える影響の整理・影響の小さい領域の評価を行った。核種移行解析(3.3.4)では、まず地下水流動評価で実施される粒子追跡線解析結果に基づき、処分場位置を設定し、地形変化・海水準変動に応じて変化する処分場から生物圏までの移行経路上の地質・水質に応じた核種移行パラメータを設定した。その条件のもと中深度処分の人工バリア出口から放出される核種移行フラックスの時間変化に応じた経路別の核種移行解析を行い、生活圏での被ばく線量を評価した。その解析結果から、地形変化を考慮した広域スケールでの核種移行評価の妥当性を判断する上での留意点を整理した。

「ニアフィールド領域における検討(3.4)」では、天然バリアにおけるニアフィールドの領域範囲の設定方法の検討に資するために、人工バリア構成材とその周辺岩盤の水理特性を考慮した処分場スケールの領域範囲の設定方法を、より広範囲の異なるスケール(サイトスケール)の地下水流動の接続の観点から2次元断面で予察的に検討した。さらに、掘削影響領域(EDZ)の発生に伴う坑道からの移行への影響を評価するために、EDZの透水性の低下や厚さに対する感度解析を行い、移行経路への影響を地下水流動の観点から処分場スケール(2次元)で予察的に検討した。

「上北地域を対象とした評価に向けた調査(3.5)」では、長期的な地形変化・地下水流動・核種移行評価に対する検証をデータが豊富に得られる地域で行うために、上北地域を対象に「上北地域を対象としたデータ整理」および「浅海域での波蝕・海食崖の後退に関する検討」を行った。「上北地域を対象としたデータ整理」では、各評価の入力・検証に必要なデータを整理し、整理したデータの一部を検討・収集した。「浅海域での波蝕・海食崖の後退に関する検討」では、上北地域で考慮すべき現象の1つである海食崖の形成・後退に対し評価手法の適用性を拡大するために、モデル・パラメータの検討を2次元断面で予察的に実施した。

3.2 諸外国の既往情報の調査

3.2.1 背景・目的

中深度処分を対象とした閉鎖後長期の安全評価において、規制側が地下水シナリオの評価の妥当性を判断するためには、解析方法・モデル・条件設定が妥当に行われていることを確認する必要がある。また処分場が沿岸域に立地した場合は、長期の安全評価において海水準変動の影響を考慮する必要があるが、その将来予測には不確かさが伴う。そこで本項目では、中深度処分の安全評価における地下水流動・核種移行解析の妥当性確認に資するために、諸外国の既往情報を調査・整理するとともに、中深度処分における地形変化・地下水流動・核種移行の各評価、および、将来の海水準変動の基本的考え方について検討した。

3.2.2 調査結果（解析方法・モデル）

処分場閉鎖後長期の安全評価における地下水流動・核種移行解析について、低中レベル廃棄物の処分が既に実施されているスウェーデン（SKB）の安全評価（SR-PSU）を対象に、解析方法・モデルの調査を行った。なお、SR-PSUでは処分深度が浅く塩分濃度の低いバルト海に面していることから、地下水流動解析において密度流の影響が考慮されていない。一方高レベル廃棄物に対する安全評価（SR-Site）では、密度流の影響が考慮されている。国内の沿岸立地では密度流を考慮する必要があると想定されるため、SR-Siteに対しても解析方法・モデルの調査を行った。主な調査文献を表 3.2-1 に示す。

表 3.2-1 主な調査文献（解析方法・モデル）

国	機関	文書	調査内容
スウェーデン	SKB	SR-PSU (SFR 処分場 (低中レベル廃棄物) の安全評価)	
		TR-14-01 ⁽¹⁾	メインレポート
		R-13-25 ⁽²⁾	地下水流動解析 (Regional scale)
		TR-13-08 ⁽³⁾	地下水流動解析 (Repository scale)
		TR-14-09 ⁽⁴⁾	核種移行解析
		SR-Site (地層処分 (高レベル廃棄物) の安全評価)	
		TR-11-01 ⁽⁵⁾	メインレポート
		R-09-20 ⁽⁶⁾	地下水流動解析 (閉鎖後初期 (間氷期))
		R-09-21 ⁽⁷⁾	地下水流動解析 (閉鎖後長期 (氷期))
		R-09-22 ⁽⁸⁾	地下水流動解析 (方法論, 設定, 結果)
		TR-10-50 ⁽⁹⁾	核種移行解析

調査した項目を以下に示す。

- ・地下水流動解析の目的・モデル化の考え方
- ・地下水流動解析の領域範囲の設定方法、処分場の再現度、解析方法
- ・水理地質構造のモデル化における不確かさ・不均質性の考え方
- ・海水準変動の考え方
- ・地形変化の考え方
- ・地下水流動解析を踏まえた核種移行解析の考え方

各項目に対する調査の整理結果を以下に示す。調査結果の詳細は Appendix II-A に示す。

○地下水流動解析の目的・モデル化の考え方

SR-PSU および SR-Site の両者とも、地下水流動解析の全体としての目的は、広域地下水流動の評価、処分場から生物圏への移行評価、処分場内外の流動・移行評価であり、そのために空間的なスケールの異なる複数のモデルを用いた階層的な解析が実施されている。この理由として、SR-PSU 以前に行われた SFR に対する安全評価 (SAFE) の報告書⁽¹⁰⁾では、数値解析をする上で1つのモデルで表現できる情報量に制限があるため、と記載されている。

○地下水流動解析の領域範囲の設定方法、処分場の再現度、解析方法

SR-PSU および SR-Site の概要、および、地下水流動解析における空間的なスケールの異なる各モデルの目的、領域範囲、処分場の再現度、解析方法を、図 3.2-1 に示す。

- 方法:空間的なスケールの異なる複数のモデルを用いた階層的な地下水流動解析
(単一のモデルで表現できる情報量には限りがある、計算負荷の問題)

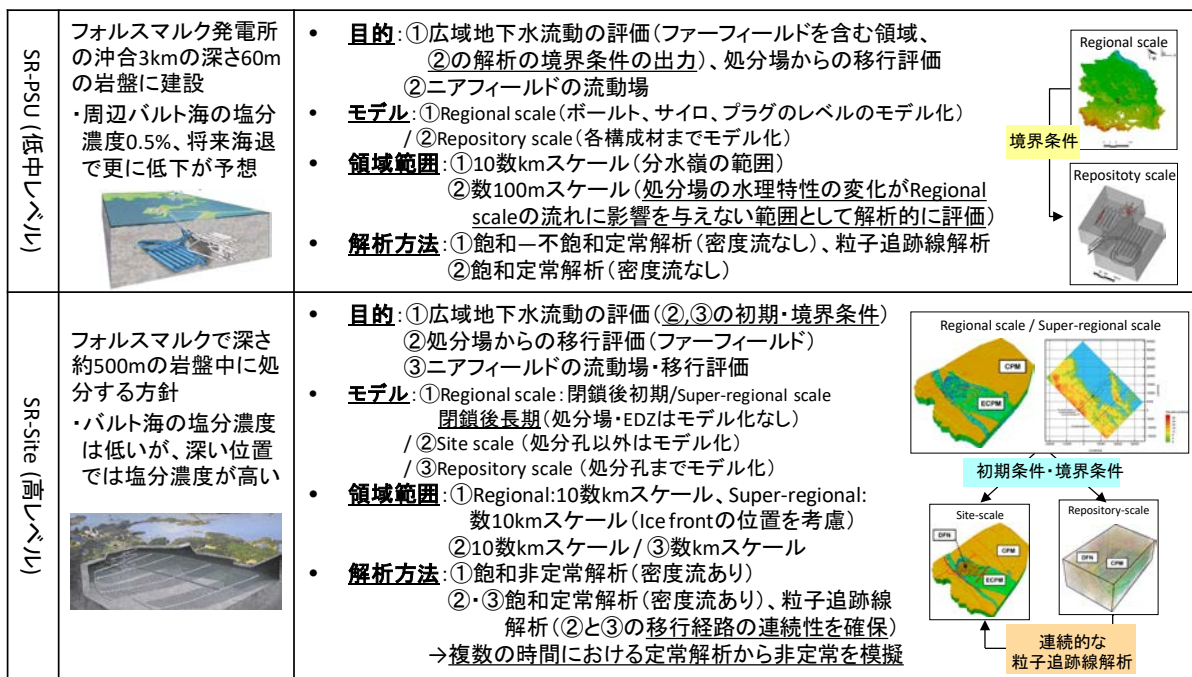


図 3.2-1 SR-PSU および SR-Site における地下水流動解析の基本情報

両者の考え方を以下のように整理した。

- ・ 地下水流動の評価モデルは大きく、広域スケールと処分場スケールに分けられる。
- ・ 広域スケールの境界は、分水嶺や地質境界に基づき設定する。処分場スケールにおける初期・境界条件は、広域スケールの解析結果に基づき設定する。
- ・ 処分場内の流動・移行は、処分場を詳細に再現した処分場スケールで評価する。
- ・ 処分場から生物圏への移行は、広域スケールで評価する。
- ・ ただし閉鎖後長期において、海水準変動の影響を密度流を考慮して評価するためには、広域スケールで非定常に浸透流・塩分濃度解析を行う必要があり、このとき広域スケールのメッシュは計算負荷上大きく取らざるを得ない。一方処分場から生物圏への移行評価を行うためには、処分場のモデル化のためにある程度詳細なメッシュ分割が必要である。この場合、処分場から生物圏への移行評価のためのモデルが別途必要となる。

○水理地質構造のモデル化における不確かさ・不均質性の考え方

SKB では水理地質構造を、HSD（表土：第四紀堆積物）、HCD（透水性の破碎帯）、HRD（破碎帯間の亀裂の少ない健岩部）等に区分し、モデルを構築している。SR-PSU および SR-Site（閉鎖後初期）では、岩盤に対する地質的・水理的な設定の不確かさ・不均質性を考慮するために、図 3.2-2 に示すように複数のケースを解析している。この中で、人工バリアは両者とも均質として扱われている。ただし人工バリアの各部材の劣化等については、処分場スケールにおいて変動ケースとして別途評価されている。

	広域スケールの水理地質構造の概念図	岩盤に対する不確かさ・不均質性の考え方
SR-PSU (低中レベル)		<p>【Regional scale】</p> <p>○HCD: 深度依存性、異方性、不均質性、ボーリングデータの外挿に関する設定の違い</p> <p>○HRD: 亀裂ネットワークモデル(DFN)に応じた17パターンの解析 (※母岩に対する不確かさはRegional domain*内のみで考慮)</p> <p>【Repository scale】</p> <p>○HCD: 上記17パターンのうち、Base case/High flow case/Low flow caseの3パターンを解析</p>
SR-Site (高レベル)		<p>【閉鎖後初期(温暖期)】</p> <p>スケール毎に以下が考慮されている。なお各ケースで、DFNモデルによる複数のリアライゼーションが考慮されている。</p> <ul style="list-style-type: none"> ・ 亀裂半径と透水係数の相関に関する設定の違い(全スケール) ・ 変形帯の可能性のある領域の考慮(全スケール) ・ 深度依存性に対する設定 (Regional scale, Site scale) ・ 処分場領域外での亀裂の設定の有無 (Regional scale, Site scale) ・ EDZの影響の有無 (Site scale, Repository scale) ・ ボーリング孔の有無 (Site scale, Repository scale)

*Regional domain: サイト周辺のボーリングデータが取得されている領域 (60本、1980～2010に取得)

図 3.2-2 SR-PSU および SR-Site における岩盤に対する水理地質構造の不確かさ・不均質性の考え方

両者の考え方を以下のように整理した。

- ・ 天然バリアの水理地質構造を、HSD（表土：第四紀堆積物）、HCD（透水性の破碎帯）、HRD（破碎帯間の亀裂の少ない健岩部）等に区分し、モデルを構築している。
- ・ HRD では、統計・確率論的に発生させた亀裂ネットワークモデル（DFN）に対して、複数のパターンを評価している。
- ・ 母岩の水理地質構造の設定に対する不確かさとして、亀裂に対する設定以外では、深度依存性・異方性・不均質性・EDZ・ボーリング孔の影響が評価されている。
- ・ SR-PSU では母岩の水理地質構造の不確かさを、ボーリングデータが取得されている範囲内のみで考慮している。

○海水準変動の考え方

気候変動シナリオとして、SR-Site では Weichselian glacial cycle climate case（過去十万年間と同じ）と Global warming climate case（CO₂ 排出の影響）の2つを基本ケース、Extended global warming climate case（CO₂ の排出の影響が大きい）等を変動ケースとして考慮している。

一方、より新しい評価である SR-PSU では、最近の科学的知見で現在の間氷期が長く継続することが示されていることを踏まえ、CO₂ の影響が中程度（Global warming climate case）・低い（Early periglacial climate case）・高い（Extended global warming climate case）場合の3つを評価し、Weichselian glacial cycle climate case（過去十万年間と同じ変動）については将来 10 万年間の代表ケースとして判断していない。

Global warming climate case における設定（気候区分・相対海水準・永久凍土の深さ）を、図

3.2-3 に示す。海水準は氷河性地殻均衡（GIA）のシミュレーションにより予測されている。

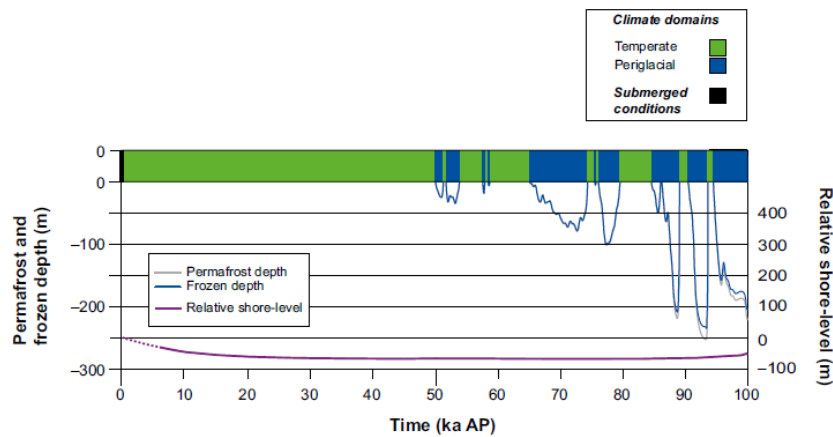


図 3.2-3 Global warming climate case における気候変動の設定⁽¹¹⁾

両者の考え方を以下のように整理した。

- ・ 将来の海水準変動として、過去約十万年間と同じケースおよび温暖化の影響を考慮したケースの両方を検討している。
- ・ 温暖化の影響を考慮したケースでは、数値シミュレーションに基づく海水準変動の評価結果が使用されている。

○地形変化の考え方

SR-PSU および SR-Site の両者における地下水流動解析では、母岩のジオメトリは固定して評価されているが、表土のジオメトリに対しては、Regolith-lake development model (RLDM)により空間的及び時間的な変動が考慮された評価が行われている。RLDM は、地表の堆積物の厚さ・層序を評価するモデルである。モデルは、Marine module（海における風によって起こされる波による侵食・土砂移動・堆積の計算）と Lake module（湖での堆積・植物の成長に伴う埋積の計算）の2つのモジュールから構成される。RLDM による評価例を図 3.2-4 に示す。

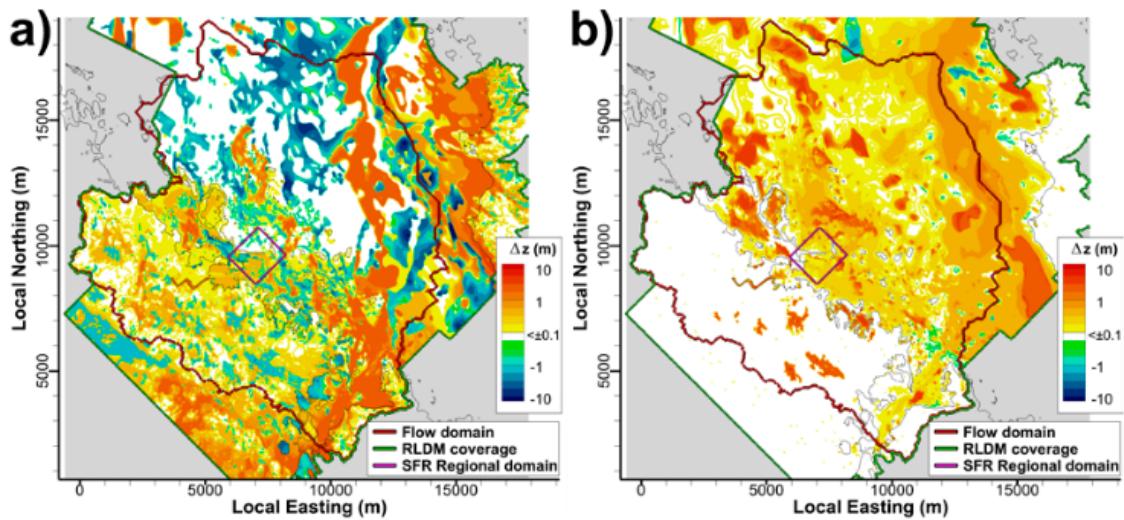


図 3.2-4 RLDM によるレゴリス（表土）の評価結果⁽¹²⁾

- (a) 現在(2000AD)に対する RLDM による評価結果と SDM-Site/SR-Site で構築された表土のモデルの標高差, b) 2000 AD と 9000 AD の標高差)

また相対的な海水準変動の評価では、氷河性地殻均衡による隆起が考慮されている。

○地下水流動解析を踏まえた核種移行解析の考え方

SR-PSU の TR-14-09 の技術報告書において、SR-PSU 安全評価のための核種輸送と線量計算に関する解析及びモデルについてとりまとめている。その中で、評価の全体像として図 3.2-5 に示す解析モデル及びデータの関連性を示している。サイトスケールに相当するファーフィールドの流れの評価を行い、その結果から処分場スケールに相当するニアフィールドの地下水流動解析を行い、この流れに基づき、対象廃棄物のインベントリ、処分場のジオメトリ、また、地下水化学に基づく原子炉圧力容器の腐食、移行及び物質データ、コンクリートの劣化データを用いてニアフィールドの核種移行解析を行い、ニアフィールド境界における放出フラックスを評価する。そして、この放出フラックスを入力として、すでに解析されたファーフィールドの流れに基づき、移行経路上の地下水化学と岩盤に対する移行及び物質データを用いてファーフィールドの核種移行を評価する。計算されたファーフィールド境界における地表流出点の放出フラックスに基づき、サイト固有の生物圏データ及びモデルに基づいて、代表的個人の線量を評価するものである。

以上のように、地下水流動における領域区分を核種移行評価における領域区分に当てはめたニアフィールド及びファーフィールドの核種移行を評価している。

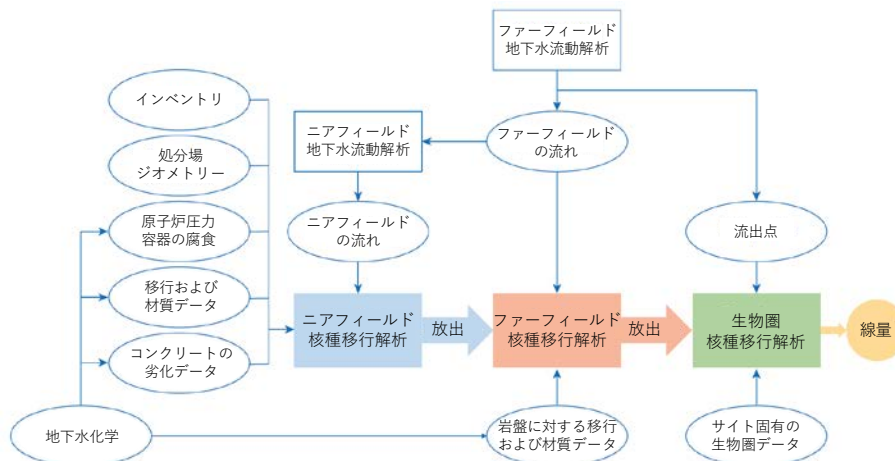


図 3.2-5 核種輸送と線量計算のための解析・モデル及びデータ

3.2.3 調査結果（海水準変動）

将来の海水準変動の設定について、既往の気候変動に関する文献調査、および、諸外国の地層処分の安全評価に関する文献調査を実施した。主な調査文献を表 3.2-2 に示す。

表 3.2-2 主な調査文献（海水準変動）

No.	発行元／著者	発行年度
①	IPCC（気候変動に関する政府間パネル） ⁽¹³⁾	2013
②	BIOCLIM（EURATOM（欧州原子力共同体） ⁽¹⁴⁾	2003
③	Loutre and Berger ⁽¹⁵⁾	2000
④	BIOPROTA（IAEA-MODARIA II） ⁽¹⁶⁾	2018
⑤	RWMD（イギリス） ⁽¹⁷⁾	2016
⑥	SKB（スウェーデン） ⁽¹⁸⁾	2014
⑦	POSIVA（フィンランド） ⁽¹⁹⁾	2012

調査対象としたのはグローバルな海水準変動である。なお、SKB については 3.2.2 に調査結果を記載しているため、ここでは記載を省略する。

① IPCC（気候変動に関する政府間パネル）第5次報告（Chapter 13）

GIA の数値シミュレーションによる既往の研究結果に基づき、以下の点を指摘している。

- ・ 今後 500 年間で海水準は上昇し、上昇の程度には CO₂ の排出量が寄与する（図 3.2-6）

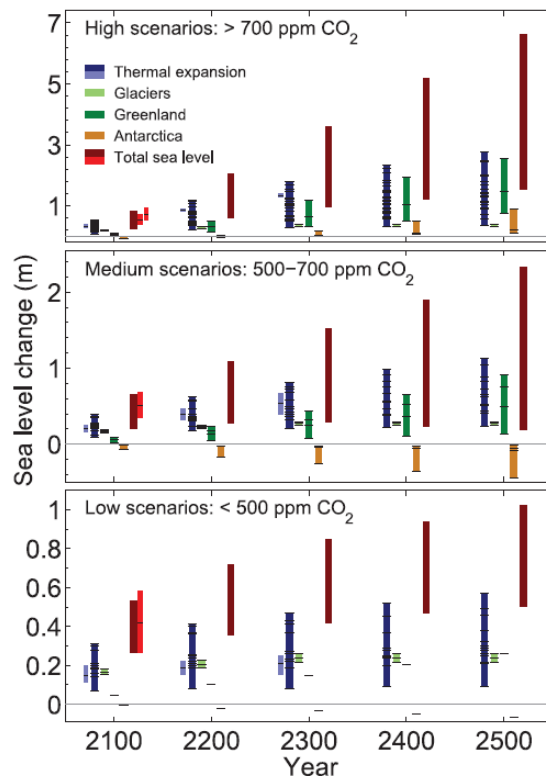


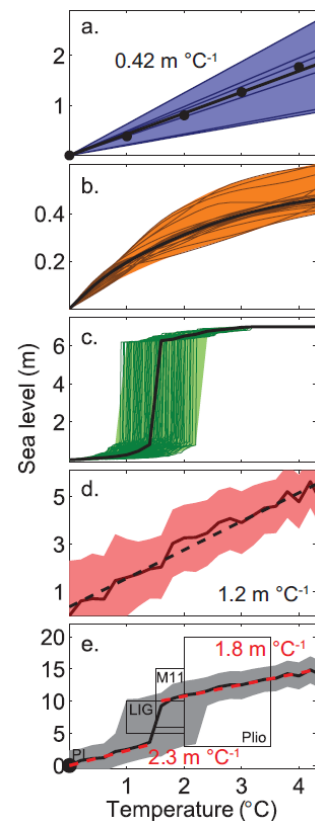
図 3.2-6 2100 年以降の海水準変動の予測⁽¹³⁾

- ・ グローバルな平均気温が産業革命前に比べ上昇した場合、海水の熱膨張・山岳氷河・グリーンランドの氷床・南極の氷床の融解により、数千年後の海水準が上昇する（図 3.2-7）

図 3.2-7 グローバルな平均気温の上昇による数千年後の海水準変動への寄与⁽¹³⁾

- 熱膨張による影響
- 山岳氷河による影響
- グリーンランドの氷床の影響
- 南極の氷床の影響
- トータルの影響

（※南極の氷床については、モデルの信頼度が低いとされている）



②BIOCLIM (EURATOM (欧州原子力共同体)による第5次フレームワークの一部, 2000-2004)

欧州においては、気候変動を考慮した生物圏評価手法に関する検討が、国際的な共同研究プログラムにより進められている。ワークパッケージ2 (地層処分に関連する時間スケール・生物圏システムの表現方法構築) による将来の海水準変動の検討結果を、以下に示す。

- ・今後 6.7 万年間は間氷期が続き、次の氷期最盛期は 17.8 万年後
- ・LLN 2D NH (2次元北半球) モデルによると、今後 5.5 万年間は間氷期が続き、次の氷期最盛期は 10 万年後となった

表 3.2-3 次の氷期最盛期の推定結果と推定方法⁽¹⁴⁾

方法	次の氷期最盛期
Statistical rules (過去からの予測)	5.5~6 万年後
モデリング (CO ₂ 濃度一定 (<230 ppmv))	6 万年後
モデリング (CO ₂ 変動 (自然発存量))	10 万年後
モデリング (CO ₂ 変動 (化石燃料の影響を考慮))	10 万年後 (Loure and Berger, 2000) 17.8 万年後 (BIOCLIM LLN 2D NH first preliminary run)

③ Loutre and Berger (2000)

Loutre and Berger (2000)では将来 13 万年間の気候が、CO₂濃度に対する複数のシナリオに対し LLN 2D NH モデルを用いて評価されている。

- ・人為的な CO₂の有無に関わらず、今後 5 万年間は氷期は始まらない (図 3.2-8)

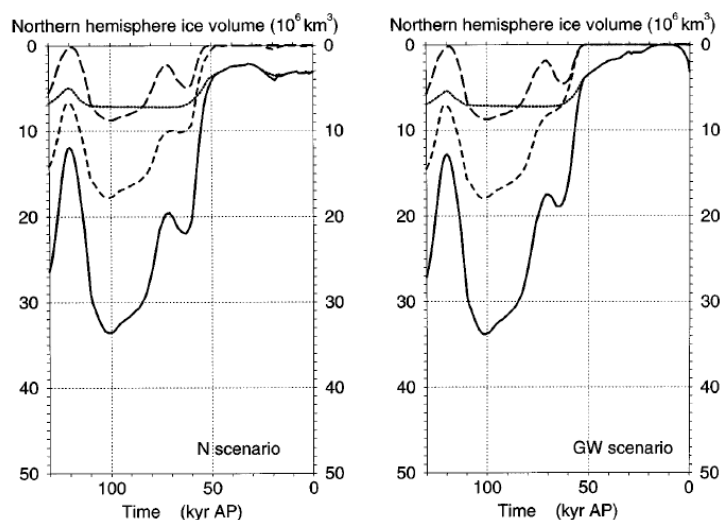


図 3.2-8 氷のボリュームの変動⁽¹⁵⁾

(左 : Natural CO₂ scenario (N), 右 : Global Warming scenario)

(実線 : 北半球、点線 : グリーンランド、破線 : 北アメリカ、長い破線 : ユーラシア)

④ BIOPROTA (IAEA-MODARIA II)

BIOPROTA は、放射性廃棄物処分に伴う核種等の放出による長期的な環境及び傾向への影響評価を対象とする、国際フォーラムである。BIOPROTA では、IAEA による MODARIA II (放射線影響評価に関するモデリングとデータに関するプログラム) のうち高レベル放射性廃棄物の長期的な安全評価を対象とするワーキンググループ 6 とともに、BIOMASS (IAEA による生物圏モデル評価に関する研究プロジェクト) の中間レポート (BIOMASS 2020) を作成した。以下では、BIOMASS 2020 に記載されている長期的な海水準変動の考慮 (A.5) についてまとめる。

数百年スケールでは、IPCC 第 5 次報告書における温室効果ガスの排出量に応じた結果（図 3.2-6）を引用している（表 3.2-4）。数千年スケールでは、IPCC 第 5 次報告書を引用し、最初の 2000 年で 10m 上昇、その後 15m で平衡に達することを記載している（図 3.2-7）。

表 3.2-4 IPCC 第 5 次報告書による数百年スケールの海水準変動⁽¹⁶⁾

Scenario	Year of Projection (AD)				
	2100	2200	2300	2400	2500
Low	0.26 to 0.53 m	0.35 to 0.72 m	0.41 to 0.85 m	0.46 to 0.94 m	0.50 to 1.02 m
Medium	0.19 to 0.66 m	0.26 to 1.09 m	0.27 to 1.51 m	0.21 to 1.90 m	0.18 to 2.32 m
High	0.21 to 0.83 m	0.58 to 2.03 m	0.92 to 3.59 m	1.20 to 5.17 m	1.51 to 6.63 m

さらに長期のスケールに対しては、以下のように整理している。

- ・人為的な温暖化ガスの排出の影響が減少すると、氷期—間氷期のサイクルが再開する
- ・氷期には MIS2 と同程度の氷床が形成され、海水準は現在より約 120m 低下する
- ・しかし長期にわたる CO₂ 排出の影響で、氷期—間氷期のサイクルは少なくとも数万年は戻らないと思われるが、10 万年以上戻らないことはないだろう⁽²⁰⁾
- ・もし氷期—間氷期のサイクルが再開し過去 40 万年間と同様のパターンを示せば、約 10 万年のサイクルが起こると予測される。その場合、振動を伴う寒冷化によって海水準は長期的には低下する傾向にあると予想されるが、地球温暖化が起こっている間は海水準は短期間上昇すると予想される。

⑤ RWMD (イギリス)

人為的な CO₂ による影響 (AN) を考慮した GIA の数値シミュレーション (LLN 2D NH モデル) により、将来の海水準変動を予測した結果を参照している^(21,22)。評価における CO₂ 濃度の条件およびグローバルな海水準変動の評価結果を、以下に示す。

- ・将来の CO₂ 濃度に対する条件設定（表 3.2-5 および図 3.2-9）
- NAT : 南極ポストークで得られた過去の CO₂ の変動から予測される回帰曲線⁽²³⁾
- AN1-8 : NAT+Sunquist(1990)による人為的な CO₂ の変動（初期濃度 : 360 ppmv (low)、760 ppmv (high)、指定した時期にかけて自然のレベルに減衰）

表 3.2-5 CO₂ に対するケース設定⁽²²⁾

ケース	CO ₂ forcing	期間
AN1	Sundquist low, decay 30ka AP	0-150 ka AP
AN2	Sundquist high, decay 30ka AP	
AN3	Sundquist low, decay 50ka AP	
AN4	Sundquist high, decay 50ka AP	
AN5	Sundquist low, decay 100ka AP	
AN6	Sundquist high, decay 100ka AP	
AN7	Sundquist low, decay 150ka AP	
AN8	Sundquist high, decay 150ka AP	
NAT	Regression predicted, using Jouzel et al. (1993)	

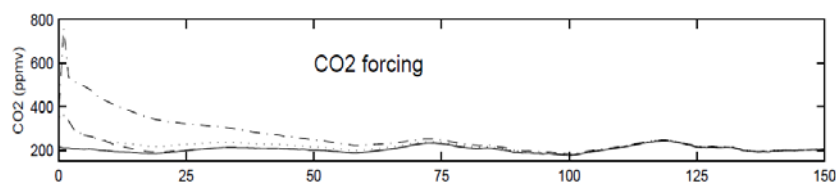


図 3.2-9 将来の CO₂ 濃度の設定⁽²⁴⁾
 (実線 : NAT, 破線 : AN1, 点線 : AN7, 一点破線 : AN8)

- ・評価結果（グローバルな海水準変動）

表 3.2-5 に示した各ケースに対する将来の海水準変動の評価結果を、図 3.2-10 に示す。

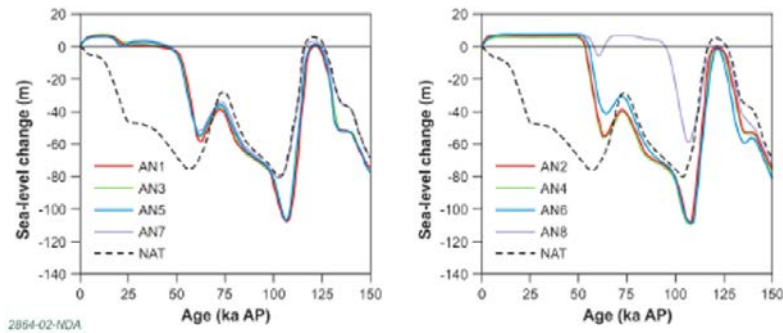


図 3.2-10 将来の海水準変動
 ((左) CO₂の影響小、(右) CO₂の影響大、NAT: CO₂の影響なし)

⑦ POSIVA（フィンランド）

- ・GIA のシミュレーションにより将来の海水準変動を予測

グローバルな海水準は将来 1 万年間で現在から±1m の範囲で変動する（図 3.2-11）

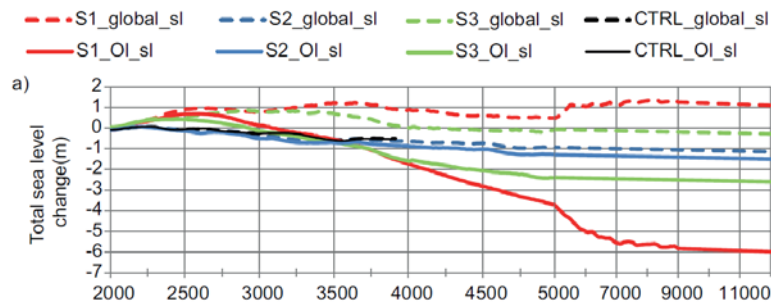


図 3.2-11 POSIVA による将来 1 万年間の海水準変動の評価結果⁽¹⁹⁾
 (点線：グローバルな海水準変動、実線：バルト海の海水準変動)

また平成 21 年度の原子力安全・保安院の委託調査事業報告書⁽²⁵⁾では、酸素同位体比から過去約 90 万年間の海水準変動を図 3.2-12 のように推定している。推定結果における過去約 90 万年間の最低海水準は-152m であった。

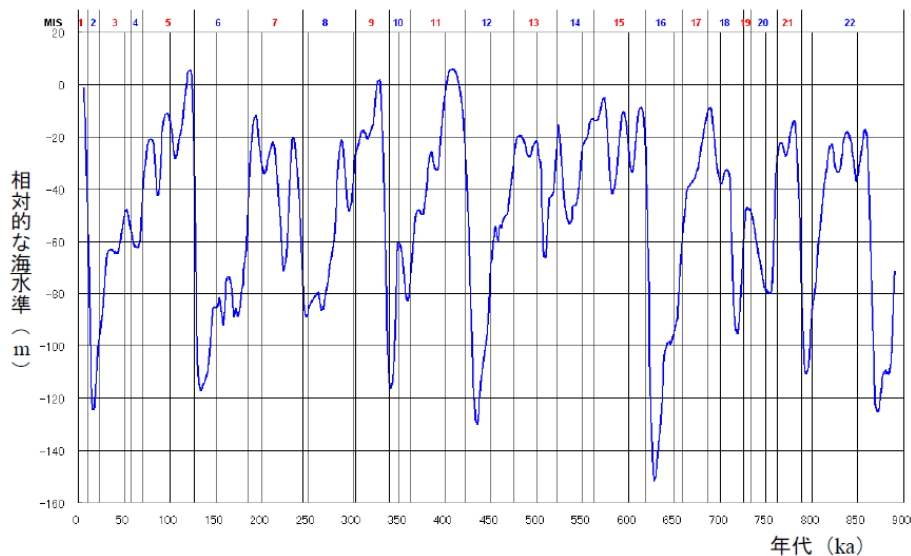


図 3.2-12 酸素同位体比から推定した過去 90 万年間の相対的な海水準変動曲線

3.2.4 中深度処分を対象とした考え方の整理

3.2.2 および 3.2.3 に基づき、わが国の中深度処分を対象とした地下水流動解析・将来の海水準変動・核種移行解析に対する基本的考え方・留意点を、以下のように整理した。

(1) 地下水流動解析

SKB の既往評価を踏まえ、わが国の中深度処分（沿岸立地）を対象とした地下水流動解析の基本的考え方に関する留意点を、表 3.2-6 のように整理した。

表 3.2-6 わが国における沿岸域での地下水流動評価の基本的考え方に関する留意点の整理

解析の目的	<ul style="list-style-type: none"> 中深度処分に係る地下水流動評価の目的は、SKBの既往評価と同様に、主に「①広域の地下水流動場の評価」、「②処分場から天然バリア、生活圏までの移行経路の評価」、「③処分場の構成要素の透水性を考慮した処分場内外の流動場・移行経路の評価」である
解析方法	<ul style="list-style-type: none"> わが国の沿岸域では、淡水地下水（内陸から海への流れ）、塩水地下水（密度差で淡水の下に潜り込む）及び汽水域（降雨や海水位の変動等による両者の混合）が存在するため、密度流を考慮した解析が必要 解析領域に河川、海域等の表層水系を含むため、隆起・侵食・堆積の地形変化による地下水流動場の変動の影響を示すことが必要。その際海水準変動による河川の下刻、海食等の経時変化の影響も考慮される必要がある 起伏のある地形の表層や比較的透水性の高い堆積層に対し飽和を仮定する評価は、現実的な地下水流動や浸出域と異なる可能性があり、地下水面の存在を基にした飽和-不飽和の評価がより適切 よって、沿岸域での地下水流動評価では、基本的に密度流、飽和-不飽和を考慮した解析がより現実的な評価であり、地形変化・海水準変動の影響を考慮した非定常解析*による流動場の評価がより適切
モデル化	<ul style="list-style-type: none"> 広域までの密度流を考慮した非定常解析を詳細なメッシュにより、①～③の評価を行うことは計算負荷の問題から現実的に不可能であり、SKBのように、広域スケール（評価①）、サイトスケール（評価②）、処分場スケール（評価③）を目的に応じて空間的スケールを変えた階層的な地下水流動評価のアプローチをとることは日本においても有効。各評価結果の整合性を図ることが重要 各評価では、処分場の構成要素や亀裂等の地質媒体の適切なモデル化が検討され、処分場スケールの評価では、詳細なモデル化が必要
領域範囲	<ul style="list-style-type: none"> 陸側は分水嶺、海側は海水準変動による汀線の変動を考慮できる範囲を設定する必要（評価①） 地形変化による分水嶺の移動の可能性がある場合、それを考慮した領域範囲を設定する必要（評価①） 粒子追跡解析の流出点が将来にわたって含まれる範囲（評価②） 領域範囲は、①\geq②$>$③であり、各スケール間の境界条件は、境界条件位置での結果と整合させる必要。評価②と③における移行経路の連続性は確保される必要がある。
地形変化	<ul style="list-style-type: none"> 隆起・侵食等による地形変化は時間的・空間的に一様な変化ではなく、サイト特性に大きく依存し、その変化を反映した地下水流動の変化を把握する必要がある。SKBにおいては、時間的・空間的な表土厚さの変化が海・湖の侵食・堆積の特徴を反映したシミュレーションに基づき考慮されており、国内においても領域毎に特徴的な侵食・堆積のモデルを取り入れたシミュレーションにより地形変化を評価することは、地形変化による核種移行への変動幅を評価する上で有用であると考えられる。

*ある時間での地形情報に基づく定常解析による流動場の結果を複数用意し、非定常を模擬する方法（SKB）もある。定常解析における時間間隔の設定などの留意点に関して、核種移行パラメータを推定する定常/非定常な粒子追跡線解析から検討する必要がある

(2) 将来の海水準変動

諸外国の既往評価に基づきグローバルな海水準変動に対する考え方・留意点を、表 3.2-7 のように整理した。

表 3.2-7 諸外国の既往評価に基づくグローバルな海水準変動に対する考え方・留意点

百年スケールの変動	<ul style="list-style-type: none"> 海水準の上昇が続き、その上昇幅は将来のCO₂排出量に依存する。 IPCC第5次報告では2500年の海水準は、排出量が高い場合現在から最大6.63m上昇するとされている。
長期スケール（千～万年）の変動	<ul style="list-style-type: none"> IPCC第5次報告における気温の上昇に伴う海水準への影響では、2°C上がると10m程度上昇し、15m程度でほぼ平衡になっている。 間氷期は数万年間続くが、将来的には氷期-間氷期のサイクルが再開するとしている文献が多い。今後CO₂が放出されないとしても、過去の間氷期により間氷期が継続するとする論文もある。
処分の安全評価での設定	<ul style="list-style-type: none"> 全ての例で温暖化シナリオが考慮されている。 SKBの評価（SR-PSU）では、最近の科学的知見で現在の間氷期が長く継続することが示されていることを踏まえ、過去10万年間と同じ変動は将来10万年間の代表ケースとして判断していない。
寒冷化の時期	<ul style="list-style-type: none"> 寒冷化に転じる時期は、今回の調査文献では多くが約5～6万年後となっており、約10万年後に最寒冷期が来ると想定している文献が多い。
寒冷期の海水準	<ul style="list-style-type: none"> MIS2に相当する最寒冷期の海水準は-120m程度としている例が多い。なお、過去90万年間の海水準変動における最低海水準は、-150m程度である。 CO₂の影響により低下の程度は小さくなる。影響が大きい場合（放出量が多い・長期間継続）の最寒冷期の海水準として、イギリス（気候変動ユニット）では-60m程度と評価している。

3.3において将来のグローバルな海水準変動の不確かさを考慮するにあたっては、これらを踏まえて表 3.2-8 および図 3.2-13 に示す5 ケースを選定した。海水準変動は過去の外挿（ケース1）を基本とし、単純化した場合（ケース2）および低海水準が持続した場合（ケース5）の影響を評価した。また3.2.3の調査結果を踏まえ、将来数万年間間氷期が継続した場合についても評価を行い、氷河性地殻均衡の数値シミュレーションに基づく評価結果（RWMD）・気温上昇に伴う海水準への影響（IPCC）・過去90万年間の最低海水準を踏まえた上で、海水準変動が大きい場合（ケース3）・小さい場合（CO₂の影響大）（ケース4）を評価した。今回は海水準の低下による影響を保守的に見るために、ケース3における最低海水準を-160mと設定した。

表 3.2-8 将来の海水準変動の不確かさに対するケース設定

ケース	設定	設定理由
1	過去12.5万年間と同じ変動	過去の外挿
2	過去12.5万年間と同じ変動（単純化）	海水準の小規模な振動の影響の把握
3	数値シミュレーションに基づく設定 [RWMD, AN1-5に類似] ・将来5万年間：間氷期が継続 (500年後に+6.63m、最大+15mまで上昇) ・寒冷化（約6万年後にMIS4と同程度まで低下、約11万年後に最大160mまで低下）	間氷期が継続・海水準変動が大きい場合 ・西暦2500年の海水準は、排出量が多い場合現在から最大で6.63m上昇 ・気温上昇に伴う海水準変動は15m程度で平衡（+2°Cで約10m上昇） ・間氷期は約数万年継続 ・過去90万年間の最低海水準：-150m程度
4	数値シミュレーションに基づく設定 [RWMD, AN8に類似] 初期に大きく低下、一定期間低海水準維持	間氷期が継続・海水準変動が小さい場合（CO ₂ の影響大）
5	・0.01m/yで低下し40000年で-40m、これを3回繰り返し-120mまで低下、その後上昇	低海水準が持続した場合の影響の把握

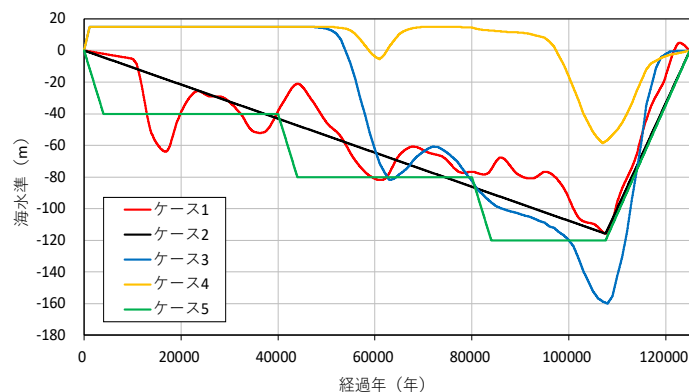


図 3.2-13 将来の海水準変動の不確かさに対するケース設定

(3) 核種移行解析

天然バリアの核種移行評価における領域の設定を考えたとき、大きくニアフィールドとファーフールドに分類される。このときのニアフィールドは人工バリアを含むものではなく、天然バリアとして核種移行抑制機能を有する領域と考える。ニアフィールド領域を信頼性のあるデータに基づいた地下水流動解析結果に基づき、天然バリアの性能が長期的、ここでは10万年程度、維持される見通しのある領域と定義する。この領域は(A)の解析を前提として、(B)、(C)の影響解析によってその領域を評価するものとする。

(A) 坑道からの調査等で取得されるデータの密度、精度が考慮された条件に基づいた地下水流動解析 (B)、(C) であること

(B) ニアフィールド領域を、処分場 (EDZ を含む) 内の透水性に係るパラメータ変化がファーフールド領域の圧力に影響を与えない範囲として設定 (SKB の考え方を参考)

(C) さらに、地形変化・海水準変動を伴う非定常の地下水流動場の中で影響の小さい領域範囲

が考慮される必要がある

一方、ファーフールド領域は、地形変化の影響をより受けやすく、生活圏の流出点も変化する領域であり、時間スケールの不確実性の影響を考慮して核種移行特性を設定したうえで核種移行解析を行うことが必要な領域と定義し、時間スケールの区分として～10万年程度と10万年以降が考えられる。

3種類の地下水流動解析（広域／サイト／処分場スケール）と、天然バリアとしてのニアファーフールド領域およびファーフールド領域の設定との関係を整理するとともに、各評価結果を踏まえた核種移行解析の考え方等を整理する必要がある。

3.3 広域における地形変化・地下水流動・核種移行解析

3.3.1 背景・目的

放射性廃棄物の処分において、隆起・侵食や海水準変動による地形変化は、地下水流動・地下環境の変化や埋設深度の減少を引き起こし、処分システムの機能を低下させる恐れがある（図 3.3-1）。隆起・侵食は時間的、空間的に様な変化ではなく、サイト特性に大きく依存し、その変化を反映した地下水流動の変化を把握する必要がある。この時、処分サイトが沿岸域周辺であれば、海水準変動に伴う汀線の移動によって、侵食の挙動が大きく変動することが想定される。このため隆起・侵食および海水準変動に伴う将来の地形変化を適切に評価する必要がある。ただし将来の地形変化の評価には不確かさが伴うことから、安全評価においては核種移行評価につながる地下水流動評価の観点から、将来の地形変化の不確かさを評価するとともにそれらによる地下水流動・地下環境に与える影響を評価することが重要である。

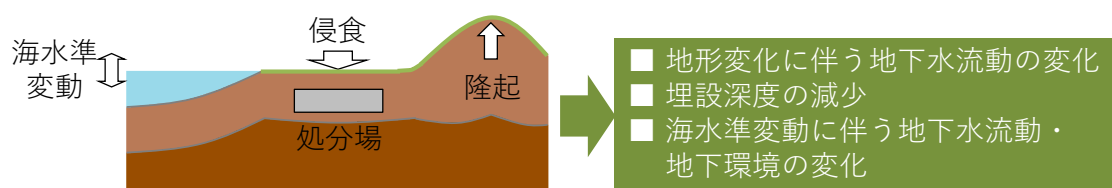


図 3.3-1 隆起・侵食および海水準変動に伴い想定される変化

平成30年度までに、隆起・侵食及び海水準変動を考慮し、現実に即した地形変化とそれに応じた地下水流動の適切な評価に対する技術的知見の蓄積を目的として、地形の時間変化に応じた地下水流動の変化を評価可能とする三次元の地形変化と地下水流動を組み合わせた評価手法の整備を進めるとともに、山地・河川・平野・海域から構成されるわが国の典型的な集水域に本手法を適用し、将来の地形変化の不確かさの予察的検討を進めた。

令和元年度においては、本手法を同地域に適用した不確かさ評価の解析事例を通して、将来の地形変化およびその不確かさの評価の方法論を整理するとともに、地形変化に与える要因・影響、および、埋設深度の減少の少ない地形条件の特徴を分析した。以上の結果を踏まえて、中深度処分における隆起・侵食や海水準変動による地形変化の評価における技術的な知見を規制上の留意点として整備した。

3.3.2 地形変化評価

本項目では、山地・河川・平野・海域から構成されるわが国の典型的な集水域を対象に、不確かさを考慮した将来の地形変化評価の方法論を整理した。さらに、対象地域において地形変化及び海水準変動に関する入力パラメータ及び拘束条件としての不確かさを考慮した将来の地形変化評価を行い、不確かさが将来の地形変化に与える影響に関する知見、評価の妥当性判断のための留意点を整備した。

不確かさを考慮した将来の地形変化評価の方法論、および、対象地域における不確かさを考慮した将来の地形変化への影響評価の結果を、以下に示す。地形変化の評価には、日本原子力研究開発機構と JX 日鉱日石探開株式会社（現 JX 金属探開株式会社）が特許権者の特許（特許第 5422833 号）による方法を用いたコード（JAEAsmtp）を用いた。JAEAsmtp の概要を図 3.3-2 に示す。コード・モデルの詳細は、平成 29・30 年度の報告書^(1,2)に記載している。

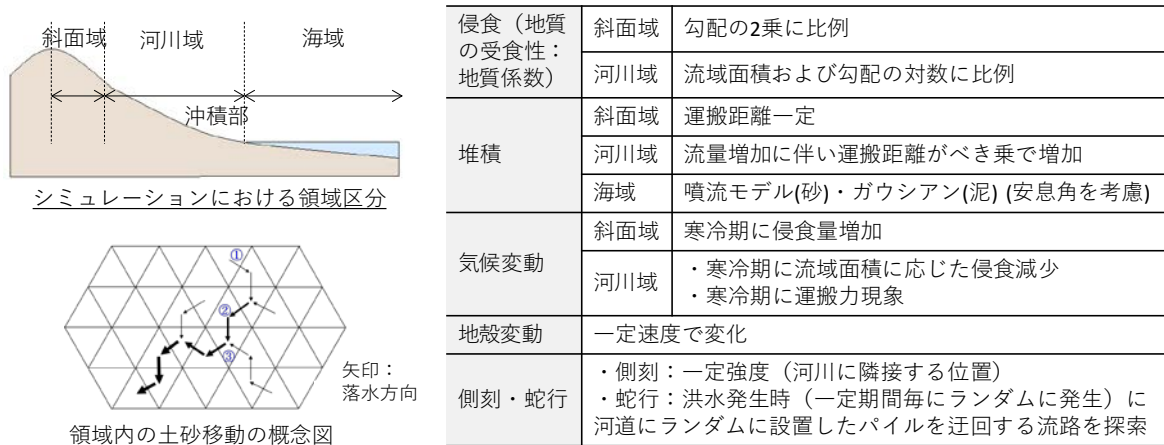


図 3.3-2 JAEAsmtp での領域設定と考慮できる事象

3.3.2.1 現在～将来の地形変化評価の方法論

山地・河川・平野・海域から構成されるわが国の典型的な集水域に対する将来の地形変化評価の全体像を、図 3.3-3 に示す。将来の地形変化評価は、過去～現在の地形変化を再現するようなパラメータの将来への外挿により実施する。パラメータ値は、過去～現在の地形変化に対する条件（拘束条件）を満たすような値を、過去～現在のシミュレーションによって求め、現在の地形の再現性を確認する。入力・拘束条件にはサイト固有の地質・地形データを活用する。ただし過去～現在の地形変化評価には不確かさが伴うことから、それらの不確かさを考慮した上で、将来の地形の変動幅を評価する。将来の地形変化の評価結果は、現在～将来の地下水流動・核種移行解析に非定常に反映させ、核種移行への影響を評価する。

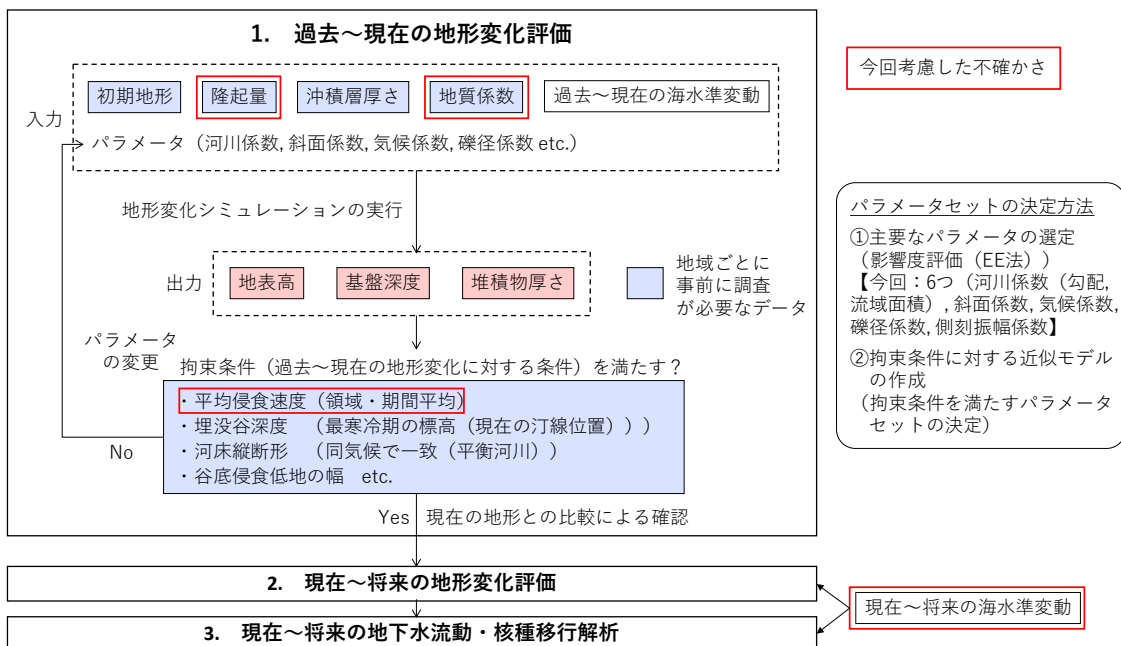


図 3.3-3 不確かさを考慮した現在～将来の地形変化・地下水流動・核種移行解析の流れ

パラメータの推定方法、拘束条件、考慮すべき不確かさについて、以下に示す。

パラメータの推定方法

十万年程度（氷期・間氷期 1 サイクル）の地形変化評価を JAEAsmtp で行う場合、対象範囲が数十 km スケール（(100m)²メッシュ）では、1 回の解析に 1 時間以上を要する。そこで、測定データ等から直接値を決められない複数のパラメータに対して、拘束条件を満たす値を以下の方法で効率的に求めた（詳細は平成 29 年度報告書⁽¹⁾に記載）。

- i) パラメータに対する影響度評価
各拘束条件に対して影響度の高いパラメータを、Elementary Effect 法⁽³⁾により抽出
- ii) 各拘束条件に対する近似モデルの作成
各拘束条件を i) のパラメータの多項式で近似、近似モデルに基づき拘束条件を満たすパラメータ値を予測
- iii) シミュレーションの実行
ii) で予測したパラメータでシミュレーションを実行、拘束条件を満たさなければ ii)～iii) を反復的に繰り返す。拘束条件を満たすパラメータセットが複数求めた場合、実際の現地形との標高差が最も小さいものを、最適値として選定

拘束条件（過去～現在の地形変化が満たすべき条件）

地形変化プロセス（隆起・侵食）のうち、隆起量は段丘面等から地域毎に速度と傾向が予測できるが、侵食による地形変化は隆起による侵食基準面からの比高の増加や、氷期・間氷期に対応した降水量の増減、あるいは海面の上下変動などによってその強さと場が変化し、また、地質の影響により侵食に地域的な差があると考えられる⁽⁴⁾。侵食・堆積に関するパラメータは測定データから直接値を決められないものが多いため、拘束条件を設定することで、過去～現在の地形変化の再現を確認する。

侵食は、ある広がりをもつ地域全体の平均的な削剥量（面的侵食）と、河川の下刻のように河谷が選択的に掘り下げられる場合（線的侵食）に分類される。面的侵食の大きさは平均侵食速度（期間・領域平均）、線的侵食の大きさは河床縦断形（平衡河川の場合：同気候で類似）を確認することで評価できると考えられる。また気候変動による河川の下刻・堆積の影響は、推定される埋没谷深度を再現することで評価できると考えられる。また河川周辺では側刻・蛇行による侵食が生じるが、その大きさは現在見られる谷底侵食低地の幅を再現することで評価できると考えられる（表 3.3-1）。

ただし過去の地形変化に対する情報がより豊富に得られるサイトでは、他にも条件を設定できる可能性がある。

表 3.3-1 拘束条件の例

拘束条件	評価対象
平均侵食速度 （期間・領域平均）	領域全体（主に斜面域）での侵食の大きさ
河床縦断形	河川域での侵食の大きさ
埋没谷深度	気候変動の影響（河川の下刻・沖積層の堆積による埋没谷形成）
谷底侵食低地の幅	側刻・蛇行の大きさ

現在～将来の地形変化評価において考慮すべき不確かさ

現在～将来の地形変化評価では、パラメータ設定の不確かさ（＝過去～現在の地形変化評価での不確かさ）、および、将来の海水準変動の不確かさを考慮する必要がある。過去～現在の地形変化評価では、入力データおよび拘束条件の設定に対して不確かさが考えられる。

3.3.2.2 対象地域における不確かさを考慮した将来の地形変化評価

平成 29 年度より対象としてきたサイト（図 3.3-4 および図 3.3-5）において、地形変化評価のパラメータの不確かさを考慮した将来の地形変化評価を実施した。

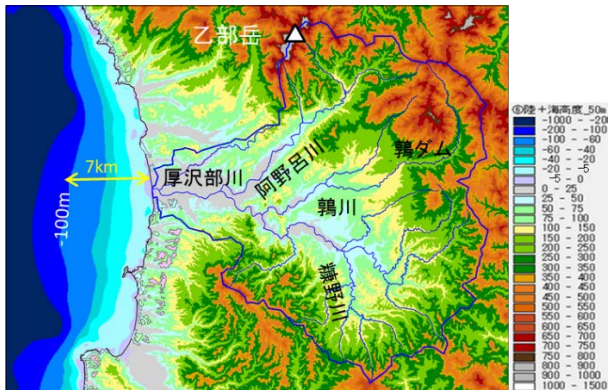


図 3.3-4 対象地域（標高および水系）

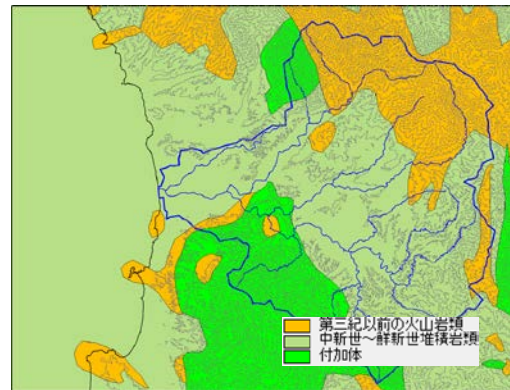


図 3.3-5 対象地域（地質分布）

(1) 解析条件

解析条件は基本的に平成 29 年度報告書に記載の内容と同じだが、評価期間、不確かさ・拘束条件の設定については変更・追加検討を行った。これについて以下に示す。

評価期間

平成 29 年度の評価では 12.5 万年前を海水準 0m として評価を開始した。しかし、実際には 12.5 万年前の海水準は +5m と推定されている（図 3.3-6）。そのため今年度は、MIS5e（12.6～11.5 万年前）において海水準が 0m となる 11.76 万年前から評価を開始した。

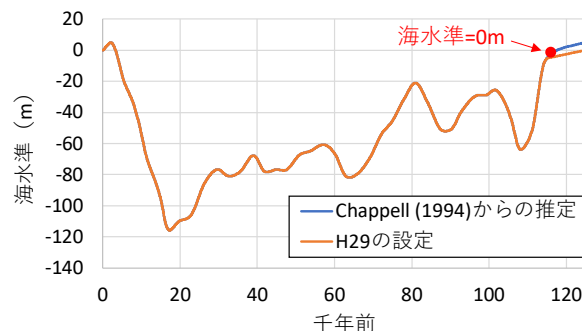


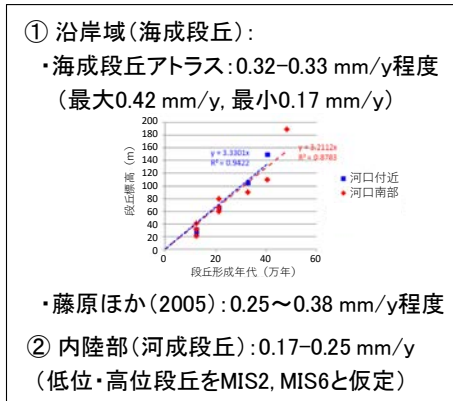
図 3.3-6 Chappell(1994)⁽⁵⁾の海水準変動と平成 29 年度報告書で設定した海水準変動の違い

不確かさの設定

現在～将来の地形変化評価では、地形変化評価の不確かさ（入力データ・拘束条件）、および、将来の海水準変動の不確かさを考慮する。入力データについては、対象地域では古地形・沖積層分布に対し取得可能な情報が不十分なため、隆起速度・地質係数に対して不確かさを考慮した。拘束条件について、今年度はまず領域全体に影響を与える平均侵食速度に対して、不確かさを考慮した。不確かさは基本ケースに対し、隆起速度・地質係数・平均侵食速度については各 1 ケースを変動ケースとして設定した。将来の海水準変動については、計 5 ケースを設定した。

● 隆起速度

隆起速度に対する不確かさは、海成段丘^(6,7)・河成段丘からの推定値に基づき、陸域（一様隆起）の隆起速度を基本ケース（0.3 mm/y）に対し、変動ケース（0.25 mm/y）と設定した（図 3.3-7）。なお対象地域において傾動隆起の可能性もあるが、山間部・海域の隆起速度を推定できるデータがないため今回は考慮していない。



- ・ 推定隆起速度は内陸部と沿岸でほぼ同程度
— **陸域を一樣隆起と仮定**
(基本ケース: 0.3 mm/y, 変動ケース: 0.25 mm/y)
- ・ 水深200m付近: 0.0mm/y
(海域に向かうほど隆起速度小と仮定)

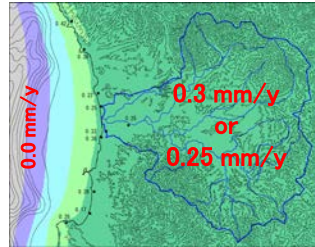


図 3.3-7 不確かさの設定 (隆起速度)

● 地質係数

対象地域の地質に対し、基本ケースでは既往評価^(4,8)での地質係数と岩石強度の関係(図 3.3-8)に基づき、中新世~鮮新世堆積岩類の地質係数を 300 とし、火山岩類や付加体の分布域で傾斜に大きな違いがないことから、中新世~鮮新世火山岩類を 400、付加体を 500 と設定した。不確かさは、図 3.3-8 での堆積岩に対する幅を考慮し、表 3.3-2 のように設定した。

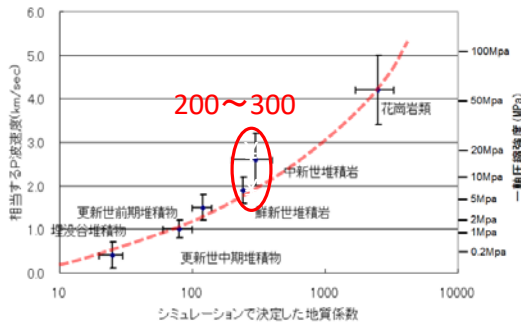


図 3.3-8 地質係数と岩石強度の関係

表 3.3-2 不確かさの設定 (地質係数)

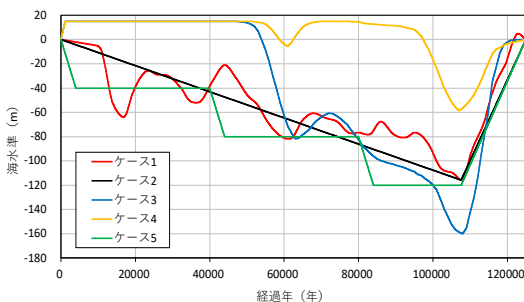
地質	地質係数	
	基本ケース	変動ケース
中新世~鮮新世堆積岩類 (シルト・岩石の互層)	300	200
中新世~鮮新世火山岩類 (凝灰角礫岩)	400	400
付加体 (砂岩・泥岩・チャート)	500	600

● 平均侵食速度

平均侵食速度(領域・期間平均)の不確かさは平成 29 年度と同様に、基本ケースは 0.089mm/y (ダム堆砂量および海成段丘の侵食速度と高度分散量の関係に基づく推定値)、変動ケースは 0.0445 mm/y (寒冷期の降水量が現在の半分と想定⁽⁹⁾)とした。

● 海水準変動

将来の海水準変動は、3.2.4 で整理したグローバルな海水準変動を設定した(図 3.3-9)。



ケース	設定	設定理由
1	過去12.5万年間と同じ変動	過去の外挿
2	過去12.5万年間と同じ変動(単純化)	海水準の小規模な振動の影響の把握
3	数値シミュレーションに基づく設定 (RWMD, AN1-5に類似)	間氷期が継続・海水準変動が大きい場合 ・気温上昇に伴う海水準変動は15m
	・将来5万年間: 間氷期が継続(最大15m) ・寒冷化(約6万年後にMIS4と同程度まで低下、約11万年後に最大160mまで低下)	程度で平衡(+2°Cで約10m上昇) ・間氷期は約数万年継続 ・過去の最低海水準: -150m程度
4	数値シミュレーションに基づく設定 (RWMD, AN8に類似)	間氷期が継続・海水準変動が小さい場合 (CO ₂ の影響大)
5	初期に大きく低下、一定期間低海水準維持 ・0.01m/yで低下し4000年で-40m、これを3回繰り返して-120mまで低下、その後上昇	低海水準が持続した場合の影響の把握

図 3.3-9 将来の海水準変動のケース設定

拘束条件の設定

設定した拘束条件を表 3.3-3 に示す。各拘束条件に対する許容誤差の設定について、河床縦断形については、河成段丘（MIS2 および MIS6）の計測値の幅として設定した。埋没谷深度については、推定結果（周辺河川での沖積層下限：天野川 35, 50m、後志利別川 55m（岡(2009)⁽¹⁰⁾）、寒冷期の河床縦断形からの推定：60m 前後⁽¹⁾）から設定した。

表 3.3-3 拘束条件の設定値

拘束条件	値（許容誤差）
平均侵食速度	0.089 or 0.0445 mm/y（±0.001mm/y）
河床縦断形（河床高）	流下長 15km：105.1m, 流下長 23km：23.7m（±20m）
埋没谷深度	55m（±15m）
谷底侵食低地の幅	Sect. 1：1.0 km, Sect. 2：0.8 km, Sect. 3：1.6 km（±0.3 km）（図 3.3-10）

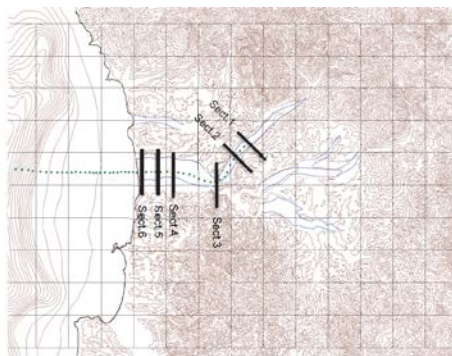


図 3.3-10 谷底侵食低地の幅の評価位置（Sect. 1～3）

(2) 過去～現在の地形変化評価（現在を再現するパラメータの推定）

過去～現在の地形変化評価では、古地形をスタートとした約 12 万年間の解析を行う。対象地域では現在残されている過去の情報（段丘等）が限られており、3 次元的にある 1 つの正しい古地形を推定することは困難である。また侵食や堆積の大きさは、サイトの特性（地形の形状や地質等）や気候などによって異なるため、過去～現在の標高変化量を一律に仮定することは現実に則さない。そこで本評価では図 3.3-11 に示す方法で、古地形をシミュレーションによって求めた。

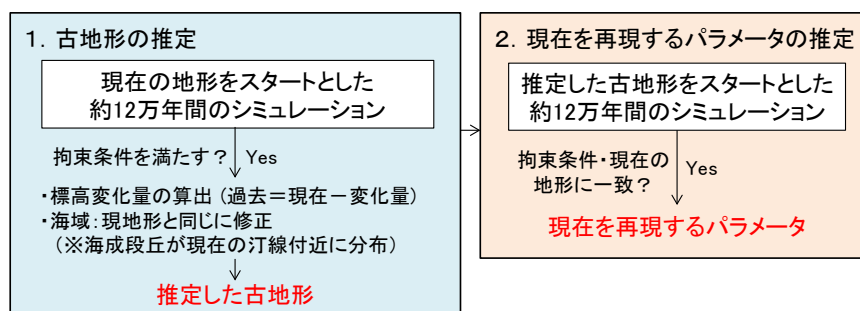


図 3.3-11 過去～現在の地形変化評価の流れ

i) パラメータの影響度評価（Appendix II-B.1）

河床縦断形・埋没谷深度・平均侵食速度に対し、EE 法により影響度を評価した。その結果、影響の大きいパラメータとして以下の 6 つを抽出した。

斜面係数、河川係数(勾配)、河川係数（流域面積）、礫径係数、気候係数、側刻振幅係数

ii) 近似モデルの作成・パラメータの推定

近似モデルは各パラメータを3通りに振った解析で決定しているが、 $3^6=729$ ケースの解析は現実的ではない。また、側刻振幅係数は低地幅を再現するように決める必要があるが、低地幅はパラメータとの相関性が小さく適切な近似モデルを作成できない。そのため、斜面・河川の侵食から海域へと、支配的なパラメータから段階的に拘束条件を満たす値を推定することとした(表 3.3-4)。

表 3.3-4 パラメータ評価の流れ

Step	評価するパラメータ	条件
1	斜面係数、河川係数(勾配、流域面積)、礫径係数、気候係数	河床縦断形、埋没谷深度、平均侵食速度
2	側刻振幅係数、側刻強度	谷底侵食低地の幅
3	安息角(砂、泥)	海域の堆積物厚さ

すべてのケースにおいて、各拘束条件に対し作成した近似モデルの自由度調整済み決定係数は概ね0.9以上であった(Appendix II-B.2)。

古地形の推定・現在を再現するパラメータの推定結果を以下に示す。なお、図については基本ケースのみを記載したが、全ケースに対する結果は Appendix II-B.3・4 に示している。

(a) 古地形の推定

拘束条件を満たすパラメータおよび拘束条件の値を、表 3.3-5 および表 3.3-6 に示す。全ケースで谷底侵食低地の幅(Sect. 3)以外の拘束条件を満たしている。地質係数の変動ケースでは、流下長 23km における河床高が他ケースより高い。これはこの位置の地質が付加体に相当し、変動ケースでは付加体の地質係数を 100 大きく設定しており、侵食されにくいためである(参照: Appendix II-B.3 図 II-B.3-10)。平均侵食速度の変動ケースでは、侵食の大きさの違いが斜面係数に表れている。

基本ケースに対する古地形の推定結果を図 3.3-12 に示す。推定した古地形と現地形との差は、陸域の河川域以外では 30m 程度であり、対象地域が過去海に沈んでいたことを考慮すると上昇傾向にあることは妥当と考えられる。河川域において、河床縦断形は古地形と現地形で類似しており、平衡河川としての拘束条件を満たしている。

表 3.3-5 パラメータの推定結果(古地形の推定)

ケース	河川係数 (流域面積)	河川係数 (勾配)	斜面係数	礫径係数	気候係数	側刻強度	側刻 振幅係数	安息角 (泥)	安息角 (砂)
基本ケース	0.0015	0.0005	0.0035	8	0.66	0.09	0.4	1°	5°
隆起速度	0.0015	0.0005	0.0035	8	0.7	0.07	0.5	1°	10°
地質係数	0.001	0.0005	0.0035	8	0.7	0.09	0.4	1°	5°
平均侵食速度	0.0015	0.0005	0.0005	8	0.62	0.07	0.5	1°	5°

表 3.3-6 拘束条件の値(古地形の推定)

ケース	平均侵食速度 (mm/y)	河床高(m) (流下長 15km)	河床高(m) (流下長 23km)	埋没谷深度(m)	谷底侵食低地の幅(m)			
					Sect. 1	Sect. 2	Sect. 3	
設定値	0.089 / 0.0445	105.1	23.7	-55.0	1.0	0.8	1.6	
推定値	基本ケース	0.087	93.7	35.7	-44.6	0.7	0.7	1.0
	隆起速度	0.090	99.8	34.4	-44.9	0.7	0.7	1.6
	地質係数	0.091	90.2	40.6	-41.8	0.8	0.7	1.2
	平均侵食速度	0.046	99.8	32.2	-40.4	0.8	0.7	1.1

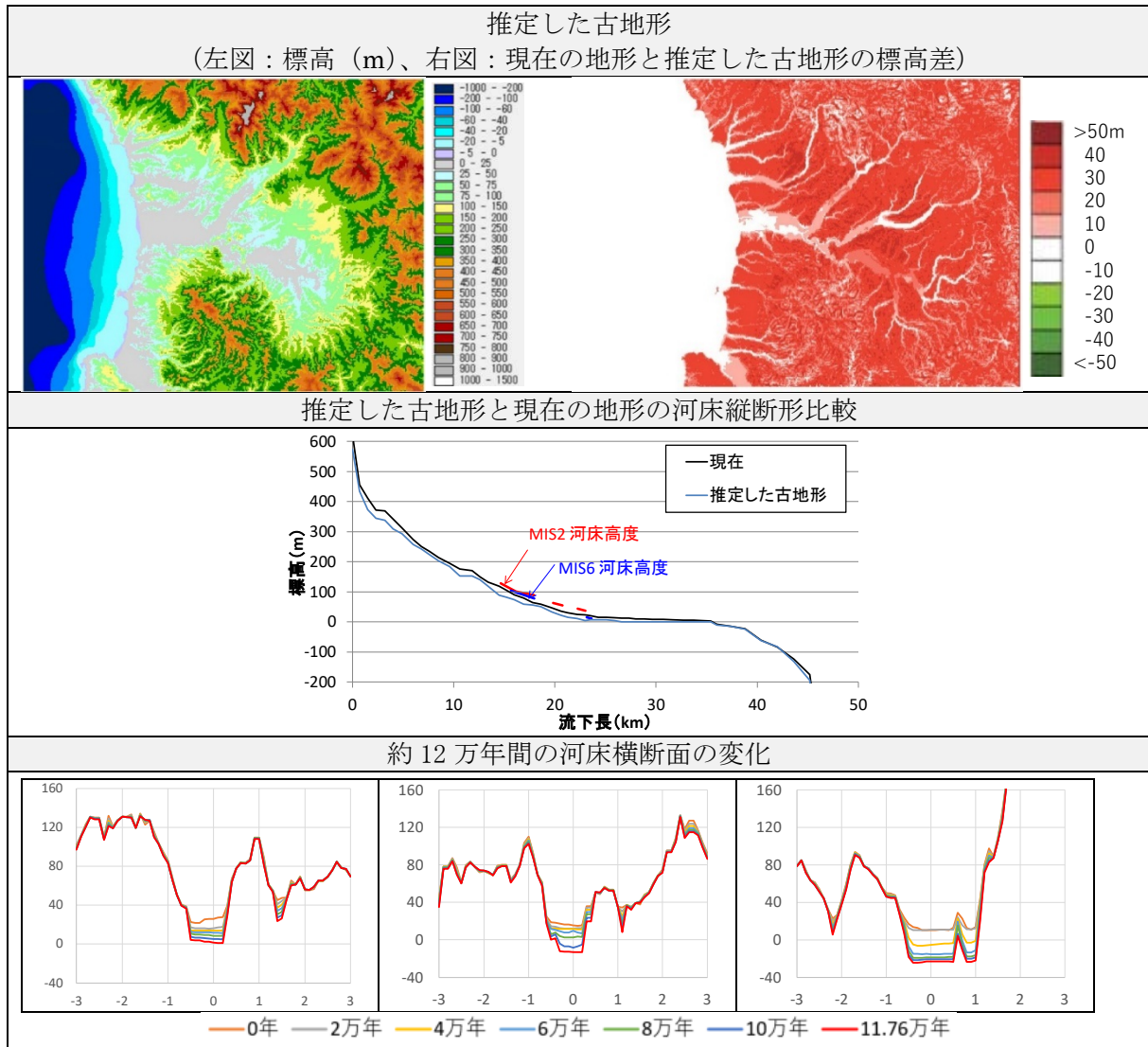


図 3.3-12 古地形の推定結果 (基本ケース)

(b) 現在を再現するパラメータの推定

拘束条件を満たすパラメータおよび拘束条件の値を、表 3.3-7 および表 3.3-8 に示す。全ケースで谷底侵食低地の幅 (Sect. 3) 以外の拘束条件を満たしている。平均侵食速度・地質係数に対するパラメータ・拘束条件の傾向は、(a) と同様である。

基本ケースに対する現在の地形の再現結果を図 3.3-13 に示す。推定した現地形と実際の原地形の標高差は、8 割以上が±15m 以内に収まった。しかし汀線位置については、主要河川の河口付近では内陸側に 1.5~2km 程度、それ以外では海側に数 km 移動する傾向が見られた。これは古地形の作成において、海域の標高を現地形と同じに修正しているためである。

表 3.3-7 パラメータの推定結果 (現在の地形の再現)

ケース	河川係数 (流域面積)	河川係数 (勾配)	斜面係数	礫径係数	気候係数	側刻強度	側刻 振幅係数	安息角 (泥)	安息角 (砂)
基本ケース	0.0015	0.0005	0.0035	7.5	0.7	0.08	0.4	1°	4°
隆起速度	0.001	0.001	0.0035	7.5	0.58	0.03	0.3	1°	5°
地質係数	0.001	0.0005	0.004	8	0.7	0.09	0.4	1°	5°
平均侵食速度	0.001	0.0001	0.001	8	0.66	0.08	0.4	2°	1°

表 3.3-8 拘束条件の値 (現在の地形の再現)

ケース	平均侵食速度 (mm/y)	河床高 (m) (流下長 15km)	河床高 (m) (流下長 23km)	埋没谷深度 (m)	谷底侵食低地の幅 (m)		
					Sect. 1	Sect. 2	Sect. 3
設定値	0.089 / 0.0445	105.1	23.7	-55.0	1.0	0.8	1.6
推定値	基本ケース	0.084	99.2	39.8	-42.6	1.1	1.5
	隆起速度	0.085	100.3	38.3	-46.0	1.1	1.0
	地質係数	0.093	93.1	43.6	-43.8	1.1	1.6
	平均侵食速度	0.040	108.6	35.8	-46.0	1.1	1.6

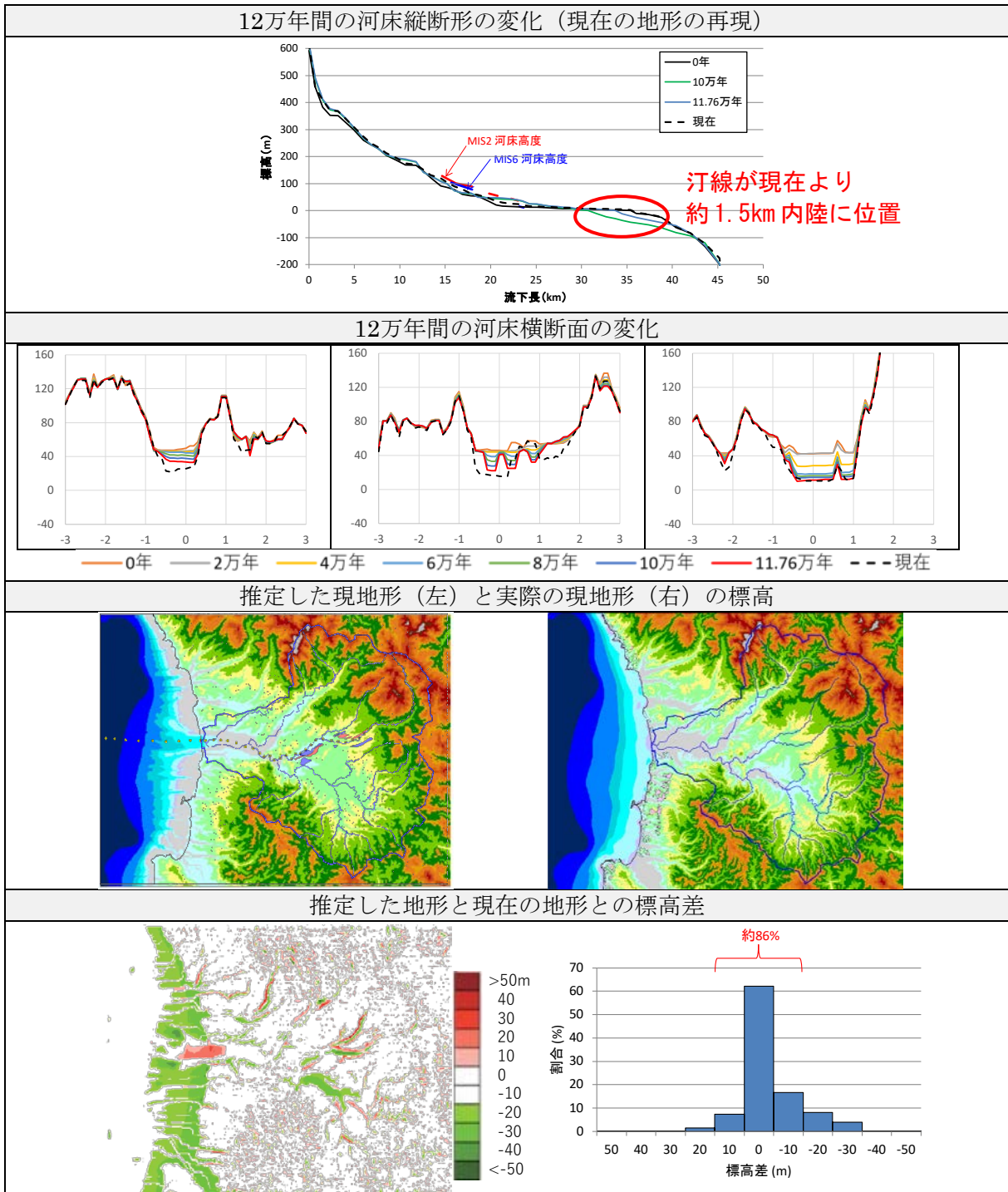


図 3.3-13 推定した古地形～現在の評価結果 (基本ケース)

(2) 現在～将来の地形変化評価

対象地域において、不確かさを考慮した現在～将来（12.5 万年後）の地形変化評価を実施した。解析ケース一覧を表 3.3-9 に示す。評価は実際の現在の地形をスタートとし、表 3.3-7 で求めた現在を再現するパラメータを外挿した。

表 3.3-9 解析ケース（現在～将来の地形変化）

No.	地形変化	海水準変動
A-1	基本ケース	ケース1（過去12.5万年間と同じ）
A-2	・隆起速度：陸域0.3 mm/y	ケース2（ケース1を単純化）
A-3	・地質係数：	ケース3（間氷期が継続・変動大）
A-4	堆積岩(300), 火山岩(400), 付加体(500)	ケース4（間氷期が継続・変動小）
A-5	・平均侵食速度：0.089 mm/y	ケース5（ケース1に類似・低海水準持続）
B-1	変動ケース（隆起速度）	ケース1（過去12.5万年間と同じ）
B-2	・隆起速度：陸域0.25 mm/y	ケース2（ケース1を単純化）
B-3	・地質係数：基本ケースと同じ	ケース3（間氷期が継続・変動大）
B-4	・平均侵食速度：基本ケースと同じ	ケース4（間氷期が継続・変動小）
B-5		ケース5（ケース1に類似・低海水準持続）
C-1	変動ケース（地質係数）	ケース1（過去12.5万年間と同じ）
C-2	・隆起速度：基本ケースと同じ	ケース2（ケース1を単純化）
C-3	・地質係数：	ケース3（間氷期が継続・変動大）
C-4	堆積岩(200), 火山岩(400), 付加体(600)	ケース4（間氷期が継続・変動小）
C-5	・平均侵食速度：基本ケースと同じ	ケース5（ケース1に類似・低海水準持続）
D-1	変動ケース（平均侵食速度）	ケース1（過去12.5万年間と同じ）
D-2	・隆起速度：基本ケースと同じ	ケース2（ケース1を単純化）
D-3	・地質係数：基本ケースと同じ	ケース3（間氷期が継続・変動大）
D-4	・平均侵食速度：0.0445 mm/y	ケース4（間氷期が継続・変動小）
D-5		ケース5（ケース1に類似・低海水準持続）

基本ケースに対する現在～将来の解析結果を以下に示す。なお、全ケースの結果は Appendix II-B.5 に記載している。

○基本ケース（ケース A-1）に対する解析結果

ケース A-1（基本ケース・海水準変動 ケース 1（過去 12.5 万年間と同じ））に対する現在～将来の解析結果を、図 3.3-14 に示す。海退時における河川の下刻・その後の海進に伴う堆積により、現在と同程度の埋没谷が形成されている。12 万年後に主要河川の河口付近で内陸に汀線が入り込むが、これは最寒冷期後の急激な海進・海水準が+5m まで上昇することが原因である。海水準変動に伴う汀線の変動は河口付近で約 11km だった。

水系網について、山間部では河川位置の変動は小さいが、傾斜の小さい (<2~5%) 中流域・下流域の平野部では河川の移動が見られ、その変動幅は最大で約 1km であった。

現在の汀線に対し、12.5 万年後の汀線位置は現在と大きく変わらないが、主要河川の河口付近以外では海域に 2.5km 程度せり出している。これは、海域における初期地形を現在と同じと仮定したこと、および、海流による土砂移動を考慮していないことが原因である。

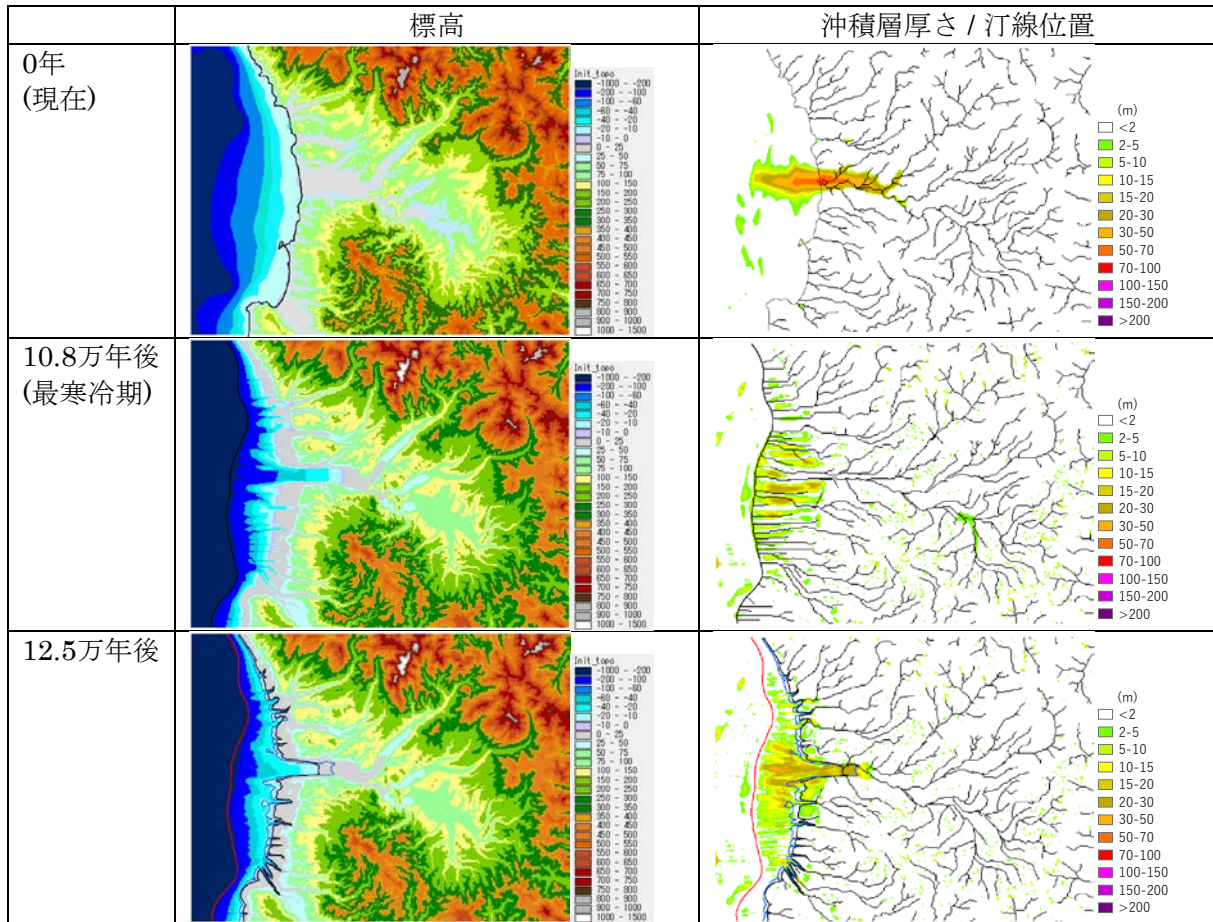


図 3.3-14 現在～将来の地形変化の評価結果（標高・沖積層厚さ・水系網）（ケース A-1）
（汀線の変動幅：赤線（10.8 万年後）、青線（12 万年後））

・地形勾配

現在（0 年）の地形勾配、および、12.5 万年後と比較した地形勾配の変化量を図 3.3-15 に示す。河川域では下刻により勾配が大きくなっている。斜面域では、大部分の領域が隆起量分だけ標高が上昇しており、勾配はほぼ変わっていない。しかし斜面域のうち、領域北部の急峻な地域では隆起と同程度の速度で侵食が起こるために、勾配が小さくなっている。

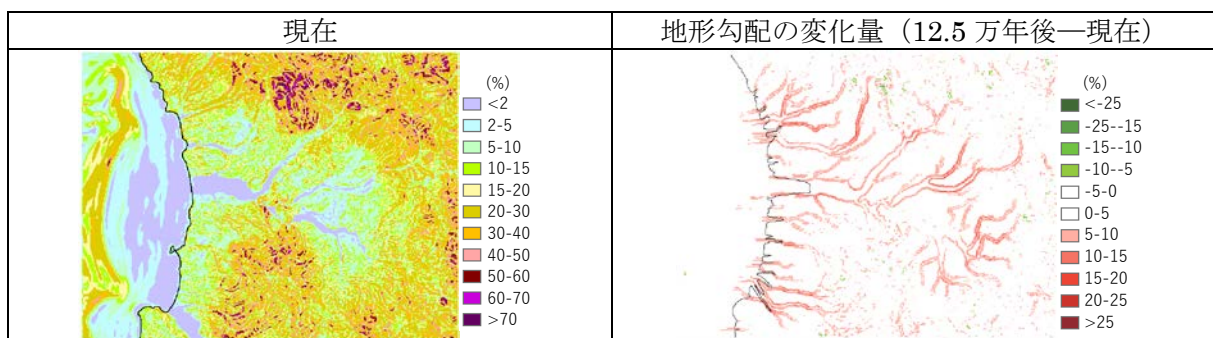


図 3.3-15 現在の地形勾配および 12.5 万年間の勾配変化量

○地形変化評価のパラメータの不確かさによる影響

不確かさ（地形変化評価（隆起速度・地質係数・平均侵食速度）・海水準変動）による影響を、領域全体および代表領域における標高・地形勾配の経時変化を用いて比較した。

i) 領域全体の変化

不確かさによる影響を見るため、基本ケース (A-1) と各ケースの標高差を整理した。なお、全ケースの結果は Appendix II-B.5 に記載している。

・ 海水準変動の不確かさの影響

ケース A-1 と A-2~5 の標高差 (6, 10.5, 12.5 万年後) を、図 3.3-16 に示す。海水準変動が基本ケース (過去 12.5 万年間と同じ変動) に類似する A-2 (単純化)・A-5 (低海水準が持続) では、全時刻で A-1 との標高差が小さい。ケース A-3・A-4 では、下流域~海域において基本ケースより標高が高い。これは、ケース A-1, 2, 5 が初期から海退が起こるのに対し、ケース A-3・A-4 では間氷期が数万年間継続するため、下流域~海域において沖積層が厚く堆積することが原因である。

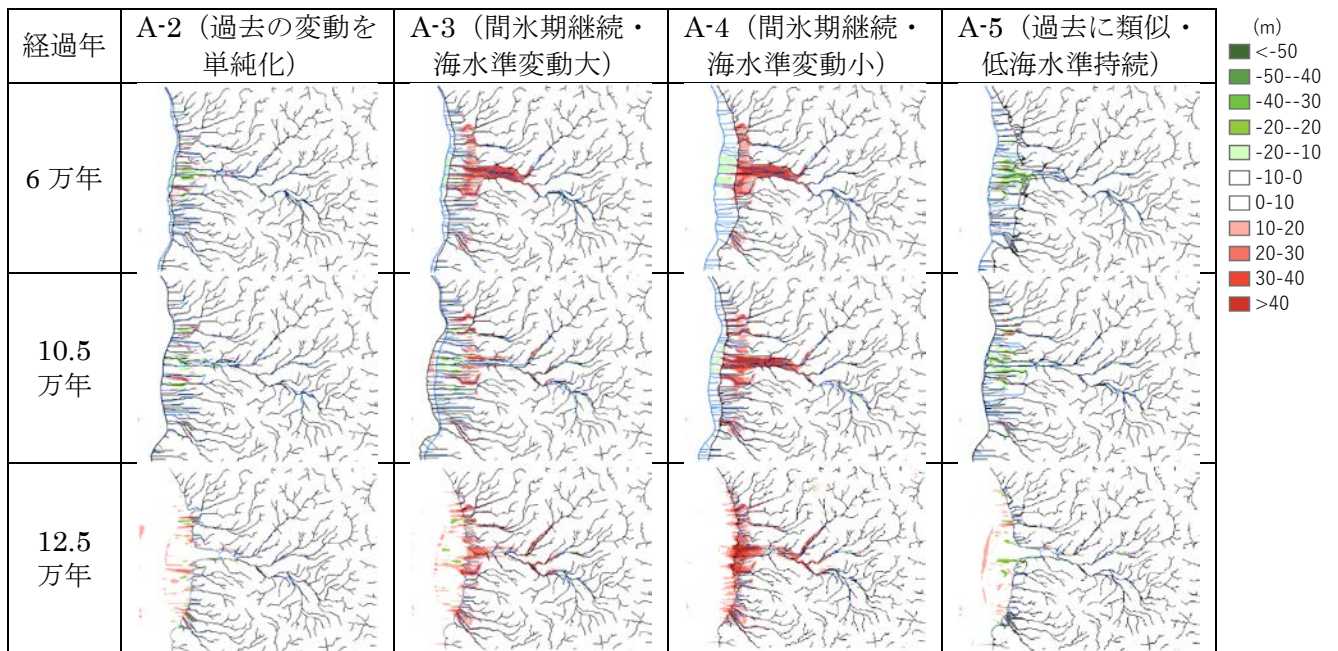


図 3.3-16 基本ケース (A-1) との標高差 (海水準變動の不確かさ)

・ 地形変化評価 (隆起速度・地質係数・平均侵食速度) の不確かさの影響

ケース A-1 と B-1, C-1, D-1 の標高差 (12.5 万年後) を、図 3.3-17 に示す。ケース B-1 (隆起速度) では、隆起速度の違い (0.05 mm/y) に伴い、陸域全体の標高が基本ケースより約 6m 低い。ケース C-1 (地質係数) では、大きな標高差は見られない。ケース D-1 (平均侵食速度) では、平均侵食速度の違い (0.0445 mm/y) に伴い、基本ケースより陸域 (斜面域) で約 10m 標高が高い。

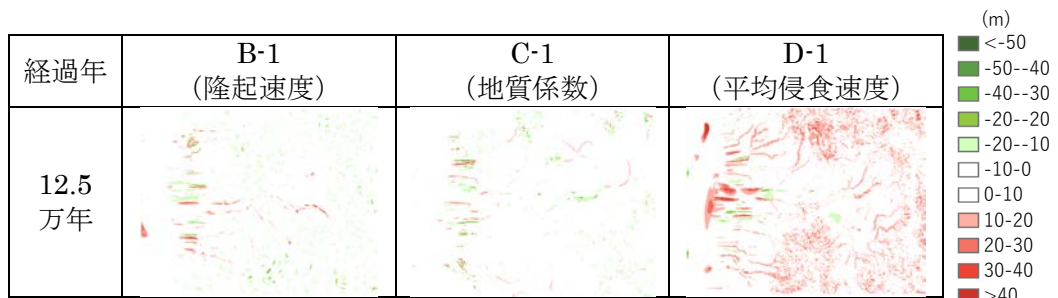


図 3.3-17 基本ケース (A-1) との標高差 (地形変化評価の不確かさ)

ii) 代表領域における変化

不確かさによる影響を見るため、地質・領域毎に設定した代表的な領域 ((3km)²) (図 3.3-18) における平均地形勾配を、各ケースに対し比較した。

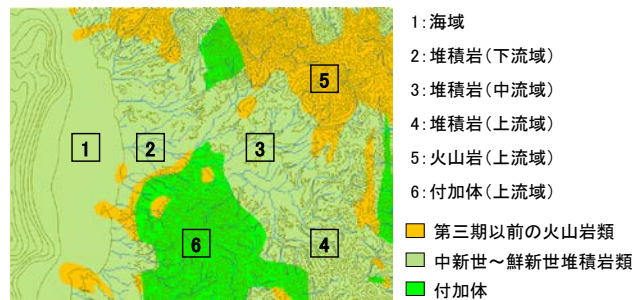


図 3.3-18 地質及び地形の違いを考慮した代表的な領域の設定

・ 海水準変動の不確かさの影響

ケース A-1～5 に対し、各領域の平均地形勾配を比較した結果を、図 3.3-19 に示す。海域・下流域では海水準変動に応じたケース間の違いが見られ、ケース間で最大約 3% の勾配の違いが見られた。海水準の時間変化に対し、海域・下流域での地形勾配の変化には相関があることが確認され、特に海域では連動して変化する様子が顕著に見られ海水準の小規模な振動の影響も確認された。また中・上流域ではケース間の違いは小さいが、ケース 4 (海水準変動小) では上流域で勾配の変化が他ケースより小さい。評価では、気候変動による侵食・堆積への影響 (気候係数) を、海水準に応じて変化させている。そのため、海水準変動の小さいケース 4 では、斜面域での周氷河作用 (凍結・融解) による侵食が他ケースより小さい。

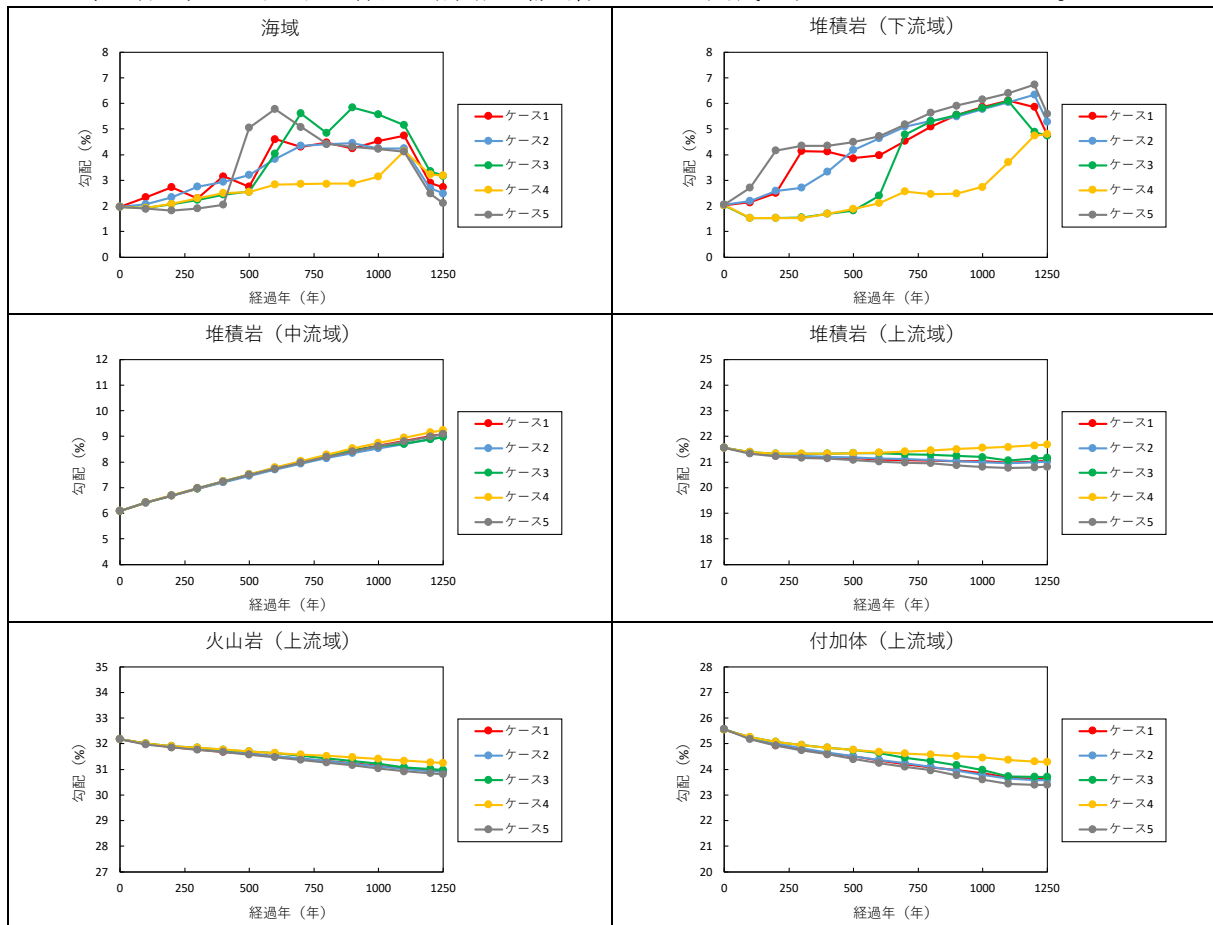


図 3.3-19 代表領域における地形勾配の経時変化 (ケース A-1～5)

・ 地形変化評価の不確かさ（隆起速度・地質係数・平均侵食速度）の影響

ケース A-1, B-1, C-1, D-1 に対し、各領域の平均地形勾配を比較した結果を、図 3.3-20 に示す。ケース B-1（隆起速度）では、基本ケースとの勾配差は堆積岩（中流域）以外の領域では小さい。これは、海域での隆起速度は基本ケースと同じ（0 mm/y）であり、上流域（斜面域）では基本ケースと斜面係数の値が同じ（0.0035）ためである。ケース C-1（地質係数）では、堆積岩・付加体に対する地質係数の設定の違いにより、上流域において基本ケースとの勾配差が最大約 1% 見られる。ケース D-1（平均侵食速度）では、上流域での勾配が基本ケースより最大約 1% 小さい。これは、平均侵食速度が基本ケースより小さいケース D-1 では、斜面係数の設定値が基本ケース（0.0035）に比べて小さい（0.001）ためである。地形変化評価の不確かさによる勾配の違いは全ケースを通して最大で約 1% であり、将来の海水準変動の不確かさによる違い（約 3%）より小さい結果となった。

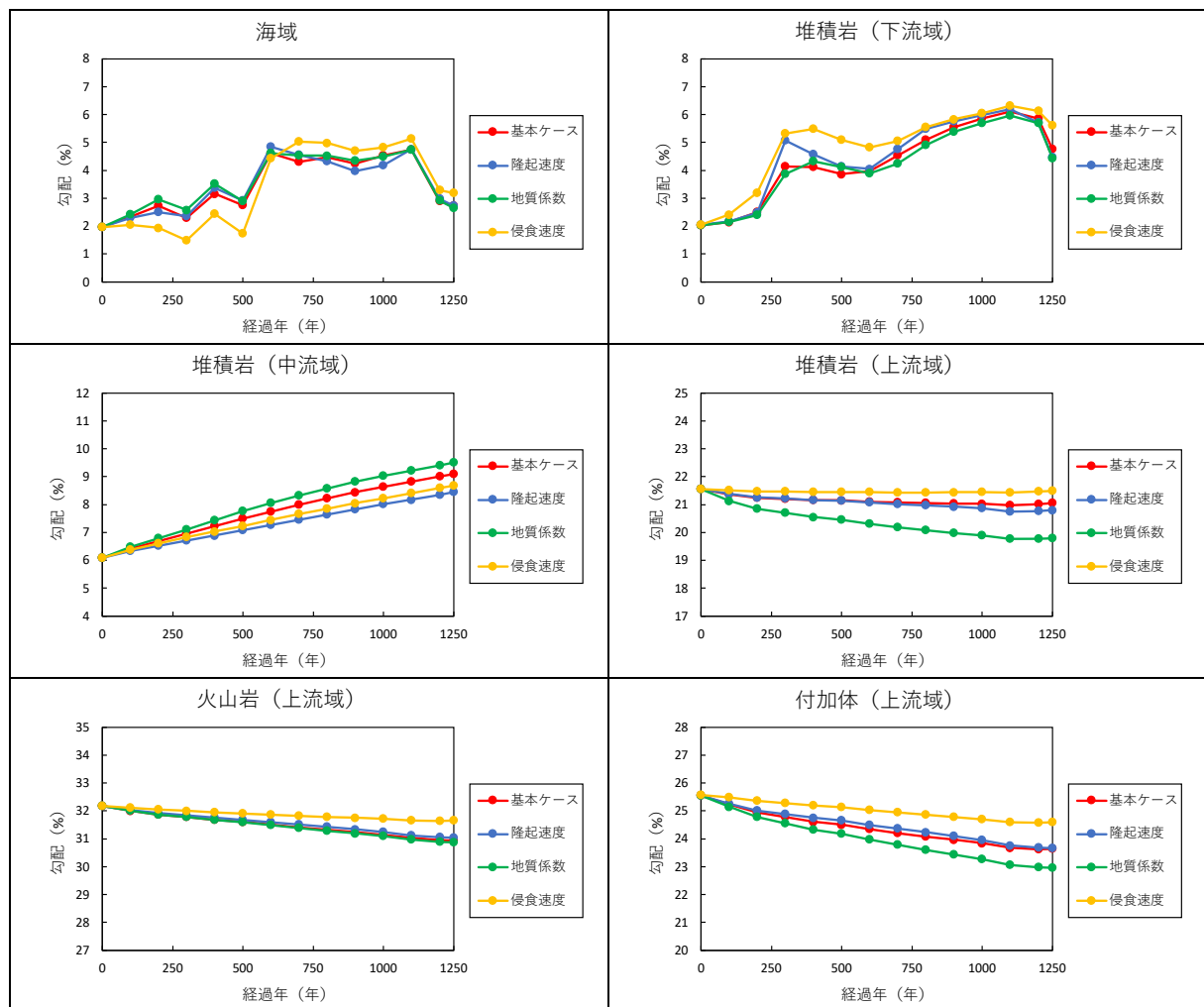


図 3.3-20 代表領域における地形勾配の経時変化（ケース A, B, C, D-1）

(3) 地形変化評価のパラメータの不確かさによる影響の整理

(2) の解析結果を踏まえ、地形変化評価のパラメータの不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響を領域・要因別に整理した結果を、表 3.3-10 および表 3.3-11 に示す。

表 3.3-10 不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（領域別）

領域	不確かさによる影響（重要因子・影響の程度）
中・上流域	<ul style="list-style-type: none"> ・重要因子：地質係数・平均侵食速度・海水準変動の不確かさ（ケース4：気候変動（周氷河作用）への影響） ・影響の程度：上記の不確かさによる地形勾配への影響は、海域・下流域と比較して小さい（2～3%程度の変動）
海域・下流域	<ul style="list-style-type: none"> ・重要因子：海水準変動の不確かさ（地形勾配は各ケースの海水準変動に応じて変動） ・影響の程度：上記の不確かさによる地形勾配への影響は、中・上流域に比べて大きい（6%程度）

表 3.3-11 不確かさが対象地域の将来の地形変化に与える影響（要因別）

不確かさ	不確かさによる影響		比較したケース	
	影響範囲 [理由]	影響の程度		
海水準変動	小規模な振動の有無	過去の海水準変動と同様の振動を考慮した場合は単純化した場合では、海域・下流域の地形勾配の経時変化に違いが現れる	振動の有無による標高・地形勾配の変化は最大で1%程度であり、その他の要因に比べて小さい	A-1 および A-2
	間氷期の継続	間氷期の継続期間には地形勾配はほぼ変化しないが、河川域・沿岸域の標高に違いが現れる [海水準が一定の場合、上流からの土砂が海域に堆積し続けるため]	河川域・沿岸域の標高は沖積層の堆積により、間氷期が継続しない場合に比べ、数十mの差が生じる	A-3, 4 および A-1, 2, 5
	海水準の低下の程度	海水準の低下の程度による違いは、海域・下流域で最も大きく現れる [海水準の低下に伴い河川の下刻による侵食が生じるため]	海水準の低下が小さい場合、海域・下流域の地形勾配は他ケースと最大約3%異なる	A-4 および A-1, 2, 3, 5
		海水準の低下の程度が大きく異なる場合、上流域でも影響が見られる [海水準変動は気候変動に伴う周氷河作用の大小に関連するため]	海水準の低下が小さい場合、上流域の地形勾配は他ケースと最大約1%異なる	
低海水準の持続	低海水準の持続による影響は、海域・下流域で現れる*	低海水準が持続しながら-120mまで低下する場合、海水準が-160mまで低下する場合と同程度の地形勾配の変動が見られる	A-5 および A-1, 2, 3, 4	
隆起速度	中流域で変化が見られる [海域：基本ケースと隆起速度の設定が同じため（0 mm/y）、上流域（斜面域）：基本ケースと斜面係数（斜面の侵食の大きさ）が同じため]	陸域（一様隆起）の設定の違い（0.05 mm/y）に伴う地形勾配の違いは最大1%で、他の不確かさに比べて小さい	A-1 および B-1	
地質係数	中・上流域で変化が見られる	地質係数のコントラストを大きくした（100ずつ変化した）場合、中・上流域における地形勾配の変化が大きくなる（最大約1%）	A-1 および C-1	
侵食速度	中・上流域で変化が見られる [基本ケースとの違いは斜面係数に現れ、これに伴う侵食量の違いは勾配が大きい領域ほど現れるため]	平均侵食速度の設定値を半分にした場合、中・上流域における地形勾配の変化が小さくなる（最大約1%）	A-1 および D-1	

* 海水準変動 ケース5で初期に見られる勾配の増加（海域・下流域）は、海水準の急激な低下（4000年で-40m）の影響も受けている

なお地形変化評価に対する不確かさについては、条件設定のための情報に限りがあった。そのため、今回の設定では隆起速度の不確かさの影響は小さい結果となったが、傾動隆起等を考慮し山間部での隆起速度が変化した場合、上流域で影響が大きくなる可能性がある。

また海水準変動 ケース 5 は、平成 30 年度の解析（2次元断面）において低海水準の維持が侵食に大きな影響を与えたことを踏まえて設定したが、今回の解析で変動幅がケース 3 と同程度であることが確認された。ケース 5 では初期 4,000 年で 40m 低下すると設定した影響で、海域では他ケースより初期の数万年間の勾配の変化が大きい。しかし、今後 4,000 年で 40m 低下するという設定は、過去十万年間の変動・既往評価で予測されている傾向（間氷期の継続）と異なるため、地下水流動解析では考慮しないこととした。

(4) 地形変化の影響を受けにくい領域の抽出

○離隔距離への影響

現在（0年）において地表から100mの位置に埋設したと仮定し、各時刻の離隔距離を全ケースに対し求めた。最寒冷期（10.8万年後）および12.5万年後の離隔距離の全ケースの平均値および標準偏差を、図3.3-21に示す。処分深度の減少および不確かさが特に大きいのは、主要河川の河口付近の下流域、および、勾配の小さい中流域である。また、離隔距離70mの確保が難しい領域は、河川周辺の斜面域まで拡大する傾向がある。

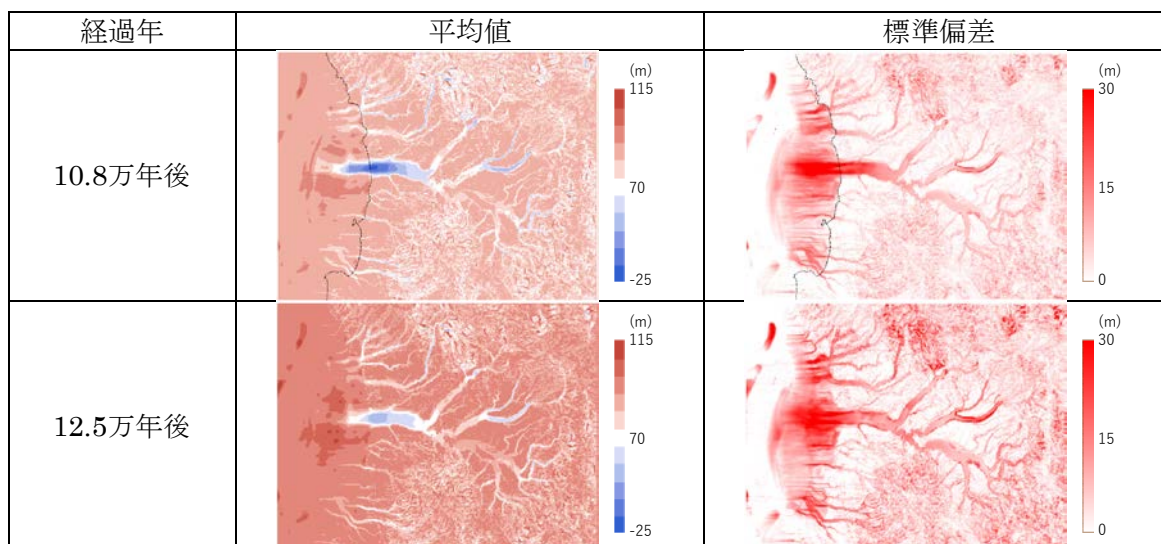


図 3.3-21 10.8 万年後・12.5 万年後の離隔距離（全ケースの平均値・標準偏差）

○汀線の変動範囲

汀線位置の変動範囲の結果を図3.3-22に示す。全ケースに対し、0年～最寒冷期（10.8万年後）までの汀線位置の変化を1万年毎にプロットした。汀線は最大で陸側に約6km入り込んでおり、海水準変動のケース2およびケース5における河川の下刻が原因である。以上の結果から、1次スクリーニングとして、この汀線の変動範囲よりも陸側で、かつ離隔距離70mを確保できる領域を選定し、廃棄物埋設地の候補地として考えた。

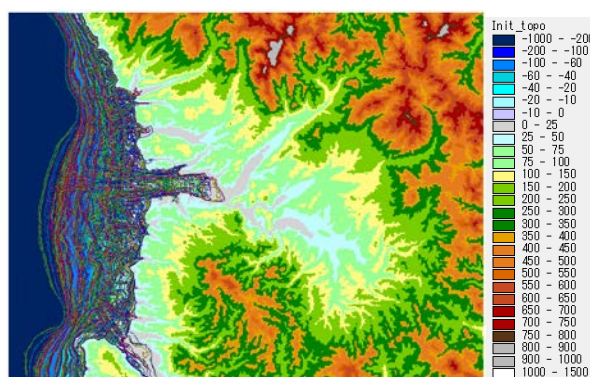


図 3.3-22 汀線の変動範囲（全ケース）（背景：現在の標高）

以上より、将来の地形変化の不確かさケースの評価から、離隔距離の空間的・時間的な変動量や汀線位置の変動範囲を統計分析することにより、埋設地の位置の設計の妥当性判断のための1つの技術情報として提供可能であると考えられる。

3.3.2.3 まとめ

本項目では、山地・河川・平野・海域から構成されるわが国の典型的な集水域を対象に、不確かさを考慮した将来の地形変化評価の方法論を整理した。さらに、対象地域において地形変化及び海水準変動に関する入力パラメータ及び拘束条件としての不確かさを考慮した将来の地形変化・地下水流動・核種移行の各評価を行い、不確かさが将来の地形変化に与える影響（影響範囲、影響の傾向・程度、重要因子）を整理した。

以上の結果から、対象地域に類似した山地・河川・平野・海域から構成される集水域を対象に、地形変化評価の妥当性判断における留意点を以下のように整理した。

- ・ 将来の地形変化を評価するためには、サイト固有の入力条件（古地形、隆起速度、沖積層厚さ、地質係数）、および、過去～現在の地形変化に対する拘束条件（平均侵食速度、埋没谷深度、河床縦断形、谷底侵食低地の範囲）を調査し、過去～現在に至る解釈・整合性を確認する必要がある。
- ・ サイト特有の拘束条件を満足し、現在の地形の再現性を示すことは、地形変化評価における不確かさの低減、さらに将来外挿への信頼性を向上させ、信頼のある地形変化の評価のためには、この評価プロセスは重要である。
- ・ 海水準が変動すると海域・下流域では侵食基準面の低下により河川の下刻が進むため、現在埋没谷が形成されている海域・下流域周辺では、海水準変動の不確かさに伴い地形勾配が優位に変動性する。このエリア周辺が埋設地の候補の場合、埋設深度の減少および、将来の地形変化が地下水流動に与える影響を確認する必要がある。
- ・ 気候が変動し寒冷化が進むと、斜面域では周氷河作用（凍結・融解に伴う侵食）の影響が大きくなるため、海水準変動の不確かさに伴う影響は上流域でも見られるが、不確かさに伴う中・上流域での地形勾配の変動幅は海域・下流域に比べて小さい。
- ・ このサイトにおいて想定した隆起速度、侵食速度、地質係数の不確かさが地形変化に与える影響は、海水準変動の不確かさよりも小さい傾向がみられた。ただし、中流域より標高の高い内陸での地形変化では、これらパラメータの影響はより顕著にあらわれる傾向があるため、埋設地の位置に応じて影響を見極める必要がある。

3.3.3 地下水流動解析

3.3.2における現在～将来の地形変化評価に基づき、地形変化・海水準変動の不確かさを考慮した非定常な3次元浸透流・塩分濃度解析を行った。解析には日本原子力機構で開発中の、多孔質媒体中での3次元地下水流動・物質移行解析コード 3D-SEEP⁽¹¹⁾を使用した。

3.3.3.1 解析条件

(1) モデル

解析に使用したモデルを図 3.3-23 に示す。モデルの水平方向の範囲は地形変化評価と同じとした。モデルの鉛直方向の範囲は、底面に設定する不透水境界の影響が塩分濃度分布の解析結果に影響を与えない範囲として、深度を-4kmとした。

メッシュサイズは、水平方向は(400m)²とし、鉛直方向は上層 10 層を 10m・下層 38 層を最大 66m として合計 48 要素に区切った。要素数は約 57 万、節点数は約 59 万である。

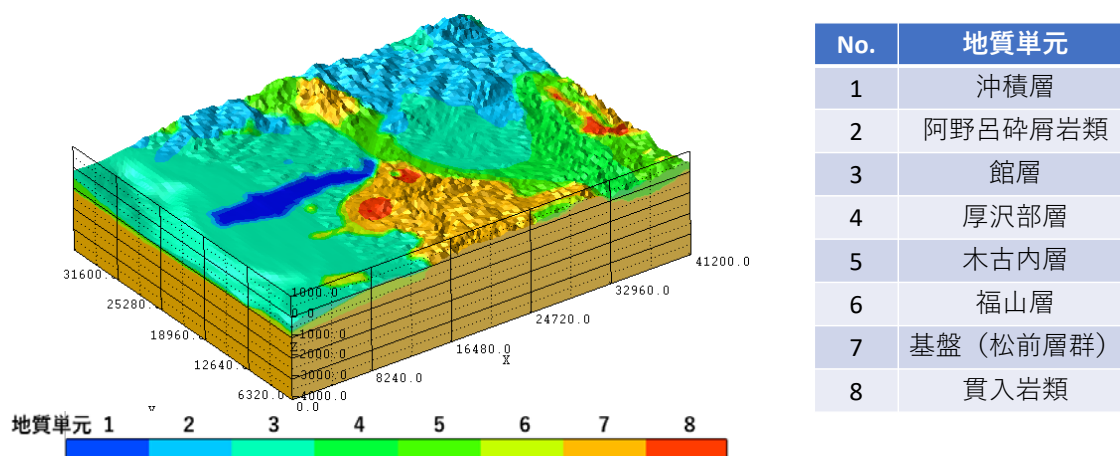


図 3.3-23 地下水流動解析 (解析体系)

(2) 境界条件

設定した境界条件を表 3.3-12 に示す。

表 3.3-12 地下水流動解析 (境界条件)

	浸透流解析	塩分濃度解析
表面 (陸域)	降雨浸透境界	c=0
表面 (海域)	海水位固定	流出: 分散フラックス 0 流入: c=1
側面 (陸側)	不透水	c=0
側面 (海側)	海水位固定	c=1
側面 (その他 (xz 断面), 底面)	不透水	フラックス 0

* c : 規格化した塩分濃度

降水量の設定は、対象地域の年間降水量 1232 mm に基づき、現在の降雨量を 1000 mm とした。最寒冷期の降雨量は、平成 30 年度報告書と同様に現在の半分になるものとし、線形に変化すると仮定した。

(3) 水理定数

・透水係数・間隙率・比貯留係数

対象地域では水理定数の測定データがないため、透水係数・間隙率は地圏テクノロジー (2015)⁽¹²⁾、比貯留係数は熊本(2007)⁽¹³⁾を参考に、類似する岩種・年代の値を設定した。

表 3.3-13 対象地域に対する水理定数の設定

地質单元	記号	時代・岩種	透水係数 (m/s)	間隙率	比貯留係数 (1/m)
基盤 (松前層群)	Bm	中生代ジュラ紀 チャート、粘板岩および 凝灰岩の互層、砂岩など	1×10^{-8} m/s 付加体 チャート ACC 区分 3	0.02	$5.0E-07$ (土岐花崗岩類)
福山層	Fy	新第三紀前期 陸生の火山噴出物およ び砂岩・泥岩・礫岩	1×10^{-7} m/s 中新世～前期更新世(Q1)の火山 岩層 MPVC 区分 3	0.05	$1.0E-06$ (土岐瑞浪層群)
木古内層	Kn	新第三紀中期～後期 海成の硬質頁岩と軟質 泥岩	1×10^{-8} m/s 鮮新統以外の第三紀層 (中新統 砂岩を除く) TA 区分 3	0.05	$1.0E-06$ (土岐瑞浪層群)
厚沢部層	Ab	中新世後期 海成の砂岩・泥岩とこれ ら互層	1×10^{-7} m/s 中新統砂岩 TS 区分 3	0.1	$1.0E-06$ (土岐瑞浪層群)
館層	Dt	中新世後期～鮮新世 海成の珪藻質泥岩から なり、砂岩・凝灰岩を含 む	1×10^{-7} m/s 鮮新統 洪積層下部 PP 区分 3	0.15	$1.0E-05$ (土岐瀬戸層群)
阿野呂碎屑 岩類	V3	中新世後期～鮮新世 安産岩質凝灰角礫岩・火 山角礫岩および溶岩	1×10^{-7} m/s 中新世～前期更新世(Q1)の火山 岩層 MPVC 区分 2,3	0.05	$1.0E-05$ (土岐瀬戸層群)
貫入岩類	V2	流紋岩・安山岩および粗 粒玄武岩	1×10^{-7} m/s 貫入岩 INT 区分 2,3	0.05	$5.0E-07$ (土岐花崗岩)
沖積層			1×10^{-5} m/s DG 区分 1	0.2	$1.0E-05$ (幌延表層)

- ・不飽和低減特性：幌延（堆積岩）で取得されているデータに基づき設定した（図 3.3-24）。

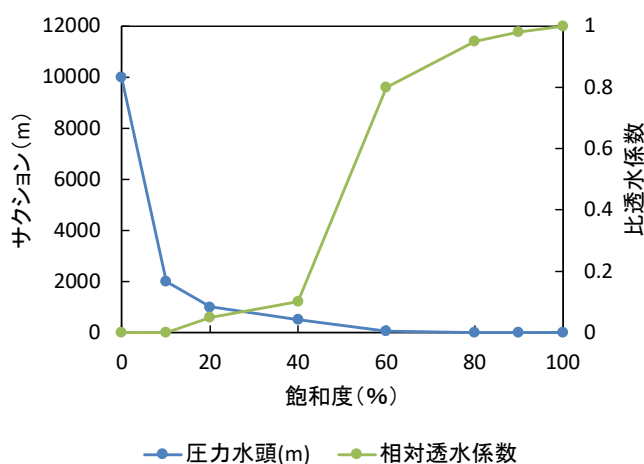


図 3.3-24 不飽和低減特性の設定

- ・分散長：平成 30 年度報告書と同様に、縦 400m（モデル深度の 1/10）、横 40m（縦分散長の 1/10）と仮定した。

（４）初期塩分濃度分布

初期塩分濃度分布（現在）は、洗い出し解析（全体が塩水で満たされた状態に対し現在の降雨量・海水準を設定し、定常状態を求め）により求めた。ただし、現在の塩分濃度分布は実際には定常状態ではなく、海水準変動による非定常な影響を受けている可能性がある。

3.3.3.2 現在～将来の地下水流動解析

現在～将来の地下水流動解析は、3.3.2 で選定した以下の 5 ケースに対し実施した。

- ・ A-1 (基本ケース・海水準変動 ケース 1) : レファレンスケース
- ・ A-3 (基本ケース・海水準変動 ケース 3) : 地形勾配の変動大 (沿岸域)
- ・ A-4 (基本ケース・海水準変動 ケース 4) : 地形勾配の変動小 (沿岸域)
- ・ C-1 (変動ケース (地質係数)・海水準変動 ケース 1) : 地形勾配の変動大 (上流域)
- ・ D-1 (変動ケース (侵食速度)・海水準変動 ケース 1) : 地形勾配の変動小 (上流域)

(1) 解析結果

○基本ケース (ケース A-1) に対する解析結果

ケース A-1 に対するダルシー流速・塩分濃度分布の解析結果を、図 3.3-25 に示す。

・ 流れの方向

初期状態 (現在) の領域全体の地域的な流動として、陸域では標高差に応じた陸から海に向かう流れ、海域では密度差による潜り込む流れが生じており、流出点は汀線位置にほぼ一致している。また陸域では地表の凹凸に応じた局所的な流動系が見られる。

海退時には、海水圧の減少による海底面への湧出が生じており、登坂(2002)⁽¹⁴⁾での仮想的なモデルでの検討結果と同様の傾向を示している。

・ 流速の大きさ

陸域の表層では山間部における勾配の大きい領域及び河口で流速が大きく 10 m/y 程度、陸域の深度約 100m での流速は 10^{-2} m/y 程度となった。河口付近の表層で流速が大きいのは、流出域であることに加え、透水性の高い沖積層が広く分布しているためである。

海域では陸域より 1~2 桁以上低い流速となった。ただし、海退に伴い陸化した領域では、沖積層の分布範囲で流速が大きい。

また 12.5 万年後の塩分濃度分布は 0 年の結果と一致しない。これは海進時の塩淡境界の変化は密度差による流れで起こるため、海退時より分布の変化に時間を要するためである。海進時に塩淡境界が移動する速さには、間隙率が大きく寄与する (塩分濃度の移動: 実流速 = ダルシー流速 / 間隙率)。

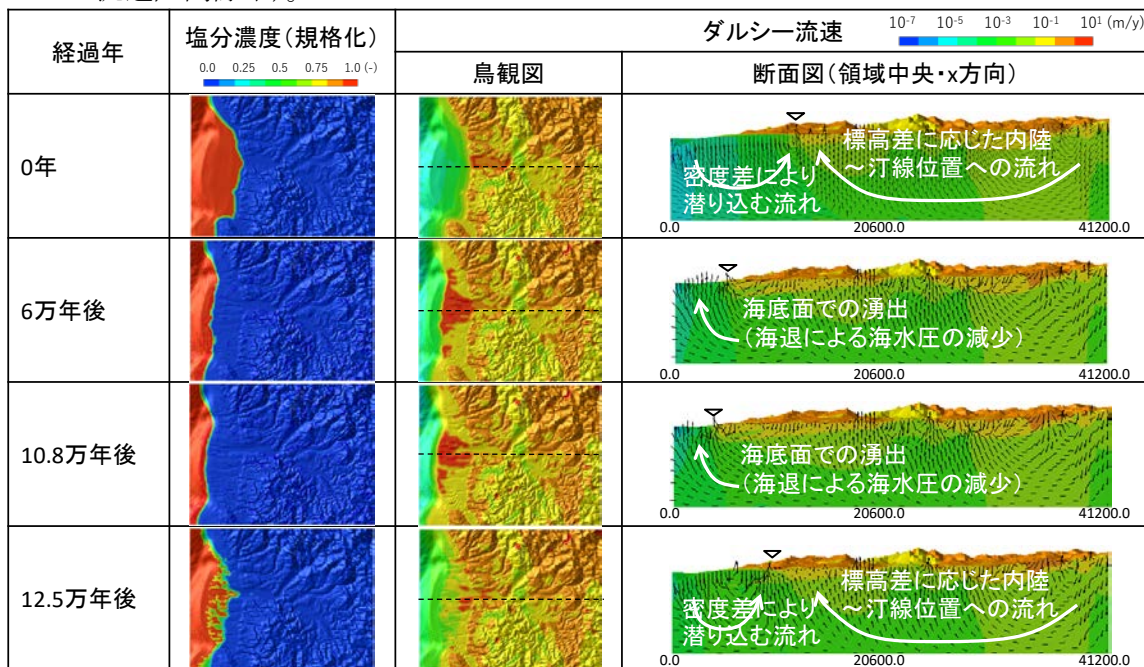


図 3.3-25 各時刻の流速・塩分濃度分布 (A-1)

○ケース 4（間氷期継続・海水準変動小）に対する解析結果

ケース A-4 に対するダルシー流速・塩分濃度分布の解析結果を、図 3.3-26 に示す。汀線位置の違いにより、6 万年・10.8 万年後の流出域が基本ケースと異なる。また A-4 は間氷期が継続し海水準変動が小さいため、河口付近に厚く沖積層が分布する影響で河口付近の広い範囲で流速が大きくなっている。他ケースの結果については、Appendix II-C.1 に示す。

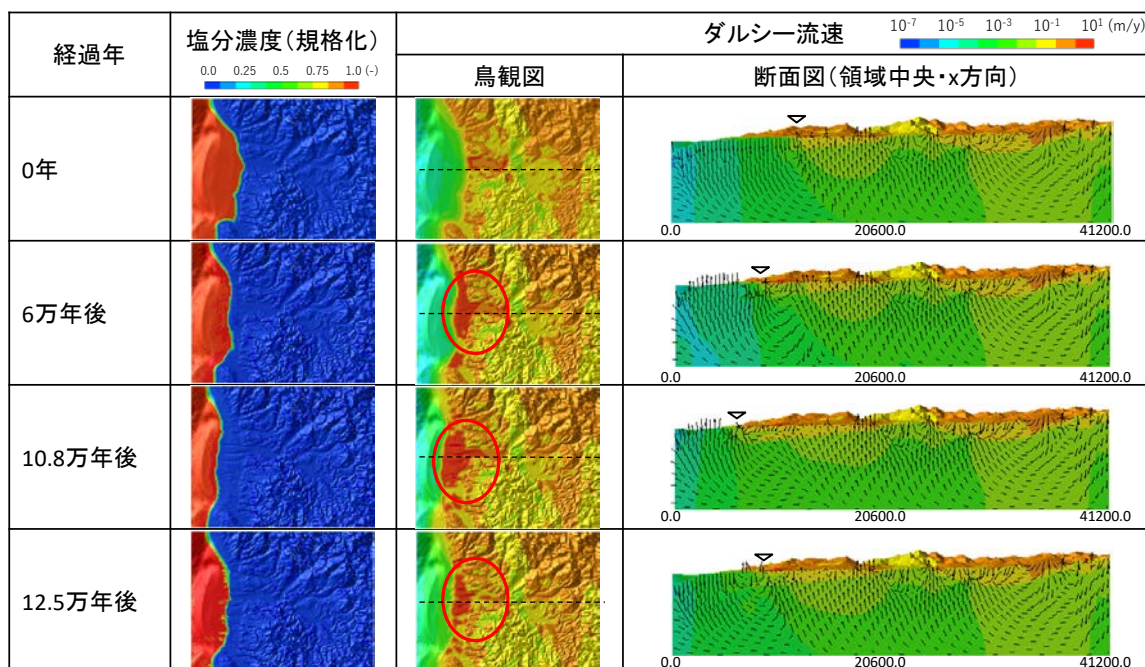


図 3.3-26 各時刻の流速・塩分濃度分布 (A-4)

○地形変化評価のパラメータの不確かさによる影響

地形変化評価のパラメータの不確かさによる埋設深度への水理学的影響を定量的に把握するため、沿岸域・内陸部に設定した代表点（深度 100m（0 年（現在））における、ダルシー流速・塩分濃度の経時変化を整理した。なお領域全体に対する比較は、Appendix II-C.2 に示す。

・ 沿岸域

代表点は、現在の主要河川の河口に対し±4km の位置で 5 点設定した（図 3.3-27）。

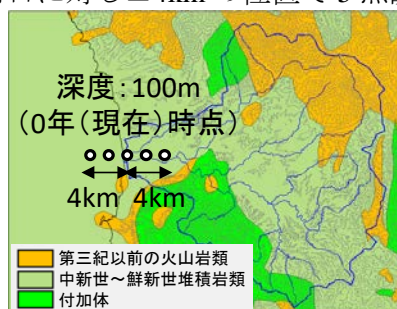


図 3.3-27 代表点の位置 (沿岸域)

各ケースに対する代表点でのダルシー流速・塩分濃度の経時変化を、図 3.3-28 に示す。

現在（0 年）の流速は、陸域では河口の 2 倍程度、海域では河口より 1～2 桁小さい。沿岸域のうち、陸域では地形勾配と流速の変化に相関があり、地形勾配の増加が動水勾配を増加させ埋設深度における地下水流動を変化させていると考えられる。海域では海水準変動によ

る汀線の移動と流速の変化に相関があり、地形勾配の変化に加え海退に伴う陸化・淡水化の影響が現れている。流速は海水準が低下するほど増加する傾向が見られ、最寒冷期の11万年後に初期からの変動が大きい。初期に対する11万年後の流速の増加は、絶対値としては河口で最も大きく（A-3：+0.21 m/y、A-4：+0.07 m/y）、初期に対する比としては海側4kmで最も大きかった（A-3：初期の約300倍、A-4：初期の約170倍）。地質係数・侵食速度の違いによる流速・塩分濃度の違いはほぼ見られない。

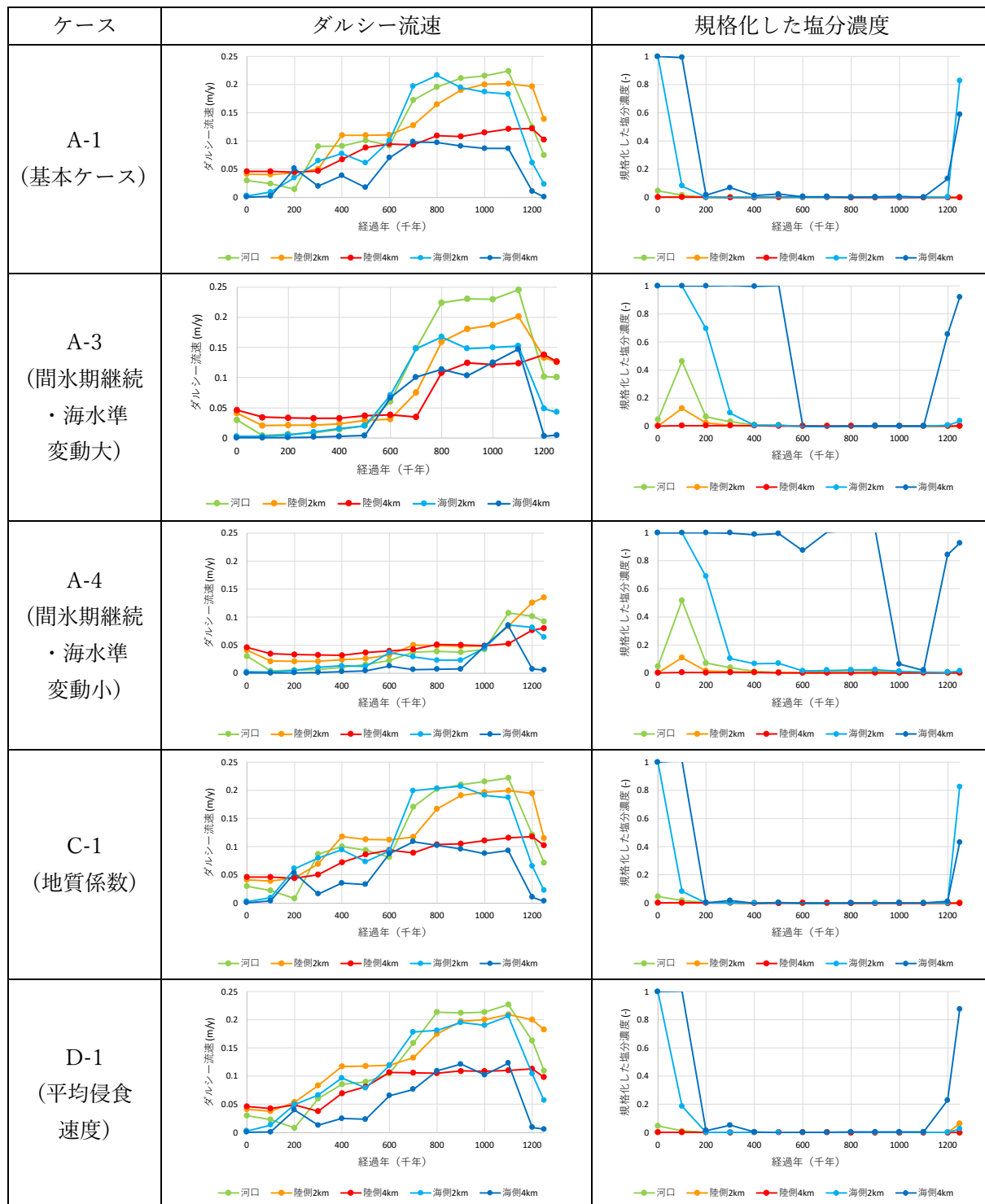


図 3.3-28 代表点における流速・塩分濃度の経時変化（沿岸域）

- ・ 内陸部
代表点は、地質毎に 4km の範囲内で 3 点設定した (図 3.3-29)。

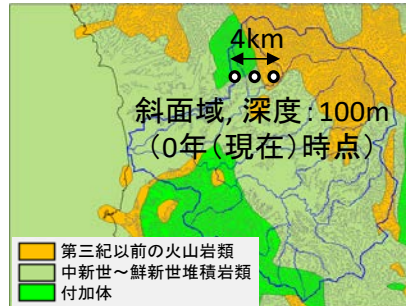


図 3.3-29 代表点の位置 (内陸部)

各ケースの代表点におけるダルシー流速・標高の経時変化を、図 3.3-30 に示す。海水準変動の違い (A-1, 3, 4) による流速への影響は小さい。地質係数の変動ケース (C-1) での標高の違いは、設定を変更した堆積岩・付加体で見られる。流速の変化の傾向が火山岩で異なるが、これは火山岩の代表点が河川近傍にあるためである。C-1・D-1 での流速の増加は概ね基本ケースより小さく、初期に対する 12.5 万年後の流速の増加は最大で、A-1 : +0.032 m/y、C-1 : +0.015 m/y、D-1 : +0.023 m/y であった。地質係数・侵食速度の違いによる基本ケースからの流速の変動幅は、初期の流速の約 1 割以内である。

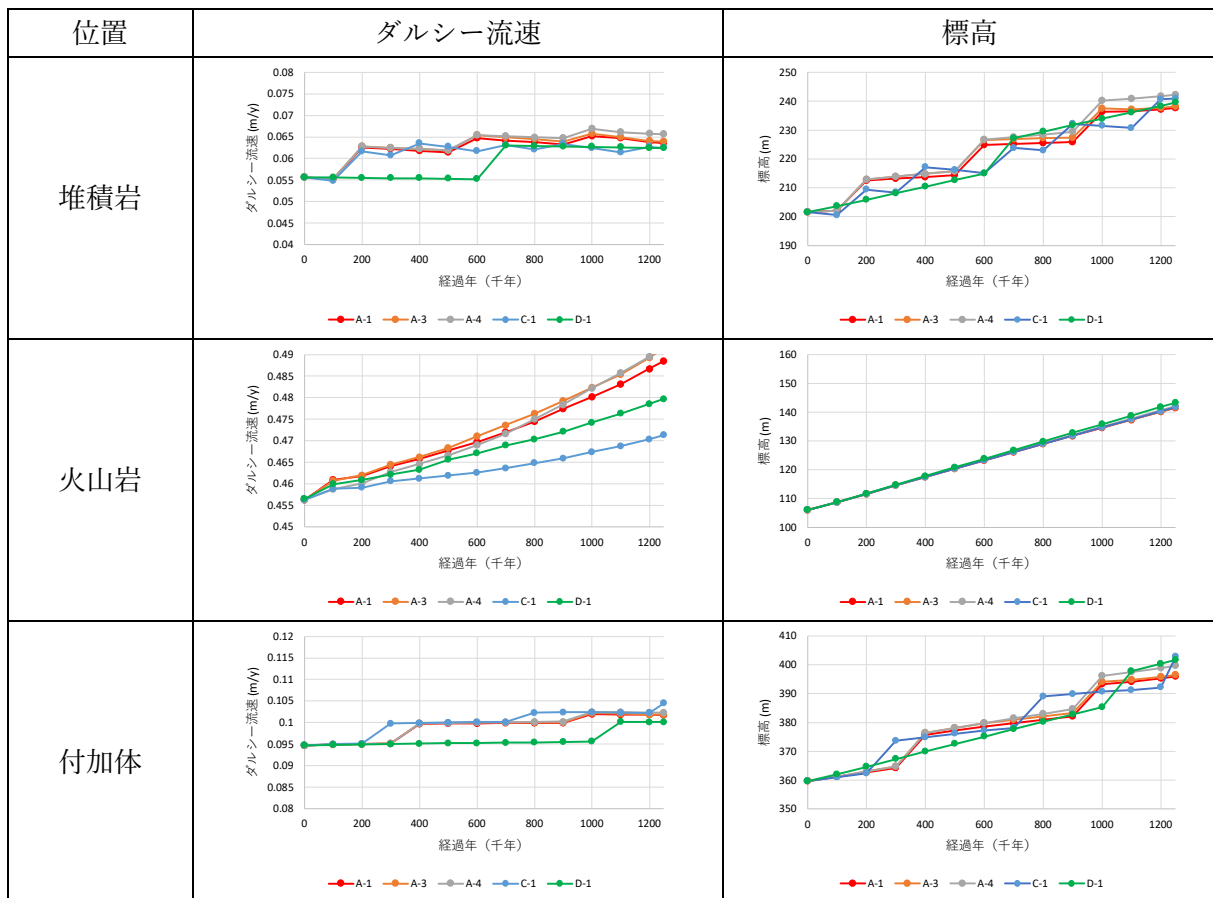


図 3.3-30 代表点における流速の経時変化 (内陸部)

(2) 地形変化評価のパラメータの不確かさによる影響の整理

(1) の解析結果を踏まえ、地形変化評価のパラメータの不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速への影響を領域・要因別に整理した結果を、表 3.3-14 および表 3.3-15 に示す。

表 3.3-14 不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響 (領域別)

領域	不確かさによる影響 (重要因子・影響の程度)
内陸部	<ul style="list-style-type: none"> ・重要因子：地質係数・平均侵食速度の不確かさ ・影響の程度：上記の不確かさによるダルシー流速の変動幅は、現在 (0年) の流速の1割以内
沿岸域	<ul style="list-style-type: none"> ・重要因子：海水準変動の不確かさ (埋設深度のダルシー流速は地形勾配に応じて変動) ・影響の程度：上記の不確かさによるダルシー流速の変動幅は、最大で現在 (0年) から2桁増加 (ケース3)

表 3.3-15 不確かさが対象地域の埋設深度におけるダルシー流速に与える影響 (要因別)

不確かさ		不確かさによる埋設深度におけるダルシー流速への影響		比較したケース
		影響範囲	影響の程度	
海水準変動	間氷期の継続	間氷期の継続期間には、地形勾配と同様に流速もほぼ変化しない	影響は見られない*	A-1, 3, 4
	海水準の低下の程度	沿岸域で影響が見られ、海水準変動に伴う地形勾配と流速の変動傾向は類似している	海水準の低下が大きいくほど、現在 (0年) に対して流速が増加する傾向にある (海水準が-160mまで低下する場合：最大約2桁増加)	
地質係数・侵食速度		内陸部で影響が見られる	流速の変動幅は現在 (0年) の流速の1割以内であった	A, C, D-1

*間氷期の継続に伴う沖積層厚の増加が核種移行へ与える影響については、別途評価が必要である

(3) 水理学的影響の小さい領域の抽出

処分場の配置を行うに当たっては、将来にわたって地形変化・地下水流動による水理学的影響が小さい領域が望ましいと考えられる。水理学的な影響の小さい範囲を抽出するため、埋設深度を 100m と仮定し、0 年 (現在) に地表から深度 100m にある位置での流速・塩分濃度を、1 万年毎に各ケースに対し求めた。全ケース・時刻の評価結果の平均値および標準偏差を、図 3.3-31 に示す。図 3.3-31 より以下が言える。

- ・沿岸域、河川域、および勾配の大きな斜面域では、地形変化・海水準変動の不確かさによる変動 (標準偏差) が大きい。
- ・処分場の埋設位置における地質分布と流速の絶対値は対応している。河川域および勾配が大きな斜面域を除く領域では、流速の絶対値および変動の両方が小さい。

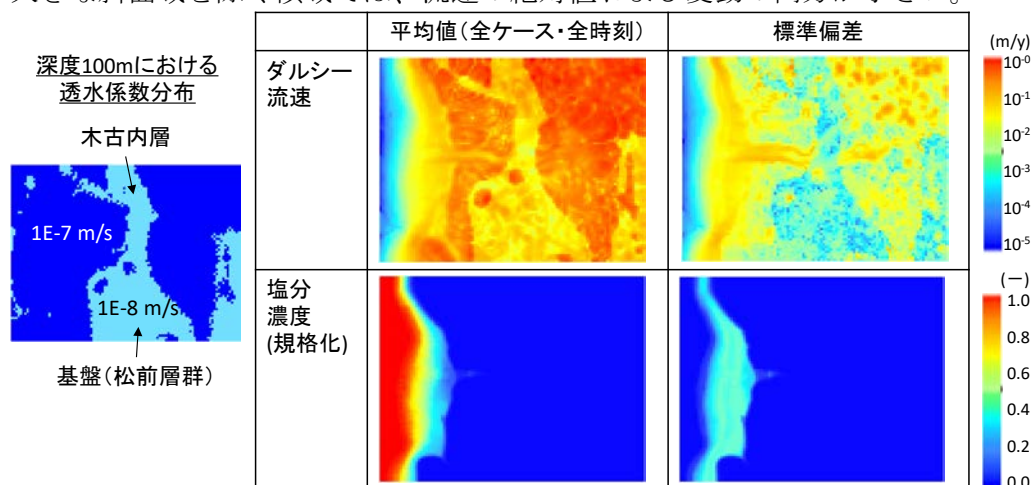


図 3.3-31 埋設深度における流速・塩分濃度の平均値および標準偏差

3.3.3.3 まとめ

本項目では、非定常な地形変化・海水準変動を考慮した複数ケースの解析から、地形変化評価・海水準変動の不確かさが埋設深度のダルシー流速に与える影響について整理した。また、水理的な小さい領域の抽出を行った。

以上の結果から、対象地域に類似した山地・河川・平野・海域から構成される集水域を対象に、地下水流動評価の妥当性判断における留意点を以下のように整理した。

- ・ 沿岸域では、海水準変動の不確かさが地形勾配および 100m 程度の埋設深度における流速に大きく影響を与える。海域では海水準変動による汀線の移動に伴い流速が変動するが、陸域でも海水準変動による侵食基準面の移動に伴い地形勾配が変化する影響で流速が変化する領域が存在することがわかった。そのため、河口周辺の海域・下流域が廃棄物埋設地の候補である場合、将来の海水準変動の不確かさを考慮して地形変化が地下水流動に与える影響を確認する必要がある。
- ・ 沿岸域では、埋設深度における流速の変化は海水準変動および地形勾配の変化と連動する傾向にあり、また流速は海水準の低下の程度が大きいほど増加する傾向にあった。そのため、廃棄物埋設地が現在の汀線に近い場合、寒冷化が起こる時期や海水準の低下の程度を考慮し、早い段階で放出される核種に対し影響がないかを確認することは重要である。
- ・ 内陸部（中・上流域）では、地形変化評価のパラメータ及び拘束条件の不確かさ（隆起速度・地質係数）に伴う地下水流動の変動は、海域・下流域に比べて小さい傾向にあった。上流域における気候変動の不確かさに伴う地形勾配の違い（周氷河作用）は、埋設深度の流速に対しては影響は小さかった。
- ・ 流速と塩分濃度の絶対値とその変動性を指標にした解析結果の解釈から、埋設深度において将来長期にわたって水理的な影響の小さい領域を把握することは可能であり、流速の絶対値および時間変動は透水性が低い地質の分布域のうち、河川域および勾配が大きな斜面域を除く領域で相対的に小さい傾向にあった。

ただし、今回の設定では沖積層に対し一様に高い透水性を想定している。海水準変動に伴う地下水流動の変化については、泥質の低透水性の堆積層の影響等を考慮した上で、実際の状況に則した検証を今後進める必要がある。また、初期塩分濃度分布についても今回は定常状態の分布を設定したが、現在においても海水準変動の非定常な影響を受けている可能性があり、設定の妥当性について今後検討が必要である。

また今回は廃棄物埋設地への影響を、埋設深度における水理的な影響に対して評価したが、今後処分場から生物圏への移行への影響も含めて検討を進める必要がある。

3.3.4 核種移行解析

中深度処分を対象とした核種移行解析では、3.3.2 及び 3.3.3 の結果を受け、地形変化による水理学的影響の小さい地点を 2 カ所選定し、中深度処分の廃棄物埋設地を設置することとして、地質係数を変動させたケースに着目して、核種移行評価を行った。地質係数は侵食に対する抵抗性を示す係数であり、数値が大きいほど侵食されにくい。地質係数を変動させたケースは地形勾配がレファレンスケースに対して大きくなることが想定され、その変化による核種移行への影響を評価するものとした。

(1) 実施概要

図 3.3-32 に電気事業連合会が示した中深度処分の概念図⁽¹⁵⁾を示す。原子力学会標準⁽¹⁶⁾における説明によると、中深度処分埋設施設では、現行の低レベル放射性廃棄物埋設施設と同等以上の核種閉じ込め性能が要求されることから、コンクリートピットの周囲に岩盤よりも透水性が小さい高配合ベントナイトを敷設し、廃棄体を定置した後のコンクリートピットにはモルタルを充填することにより一体化されている。また、モルタルなどのセメント系材料については、現行埋設施設では収着性能しか見込んでいないが、コンクリートピット内面又は外面に、より緻密な材料を用いることによって拡散抑制効果が期待されている⁽¹⁶⁾。

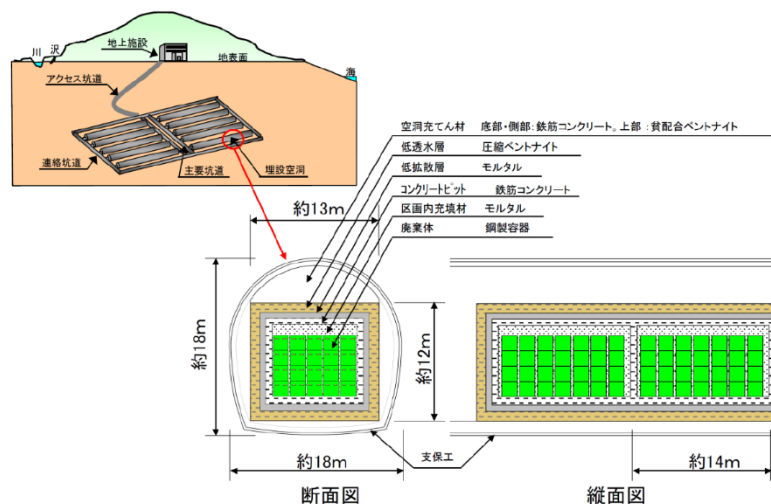


図 3.3-32 中深度処分の埋設施設の構造イメージ

本評価では上記の埋設施設を対象地域のある地点に設定した際の核種移行を解析する。その地点として、3.3.3.2 で分析した水理学的影響の小さい領域から図 3.3-33 に示す 2 地点を選定した。①の地点は支流である 2 つの河川に挟まれた点であり、当該領域を拡大した図 3.3-34 及び図 3.3-35 に示すように、周囲に勾配の大きな斜面は存在せず、堆積岩類で構成される。一方、②の地点は、堆積岩で構成される領域であるが、西側に斜面があり、西側一帯は地質係数の大きい付加体で構成されている。

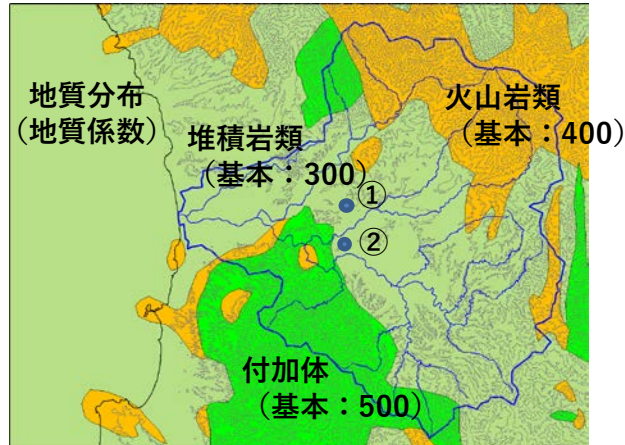


図 3.3-33 選定した 2 地点 (位置①、②) (地質分布図上で表示)

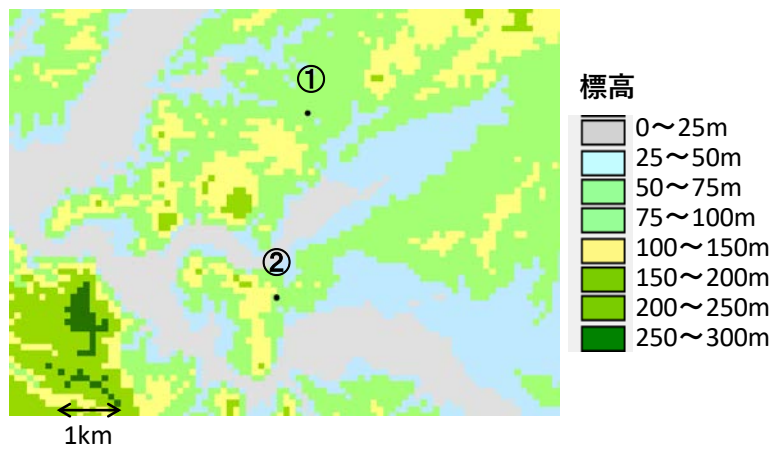


図 3.3-34 選定した 2 地点 (位置①、②) の拡大図 (標高分布図上で表示)

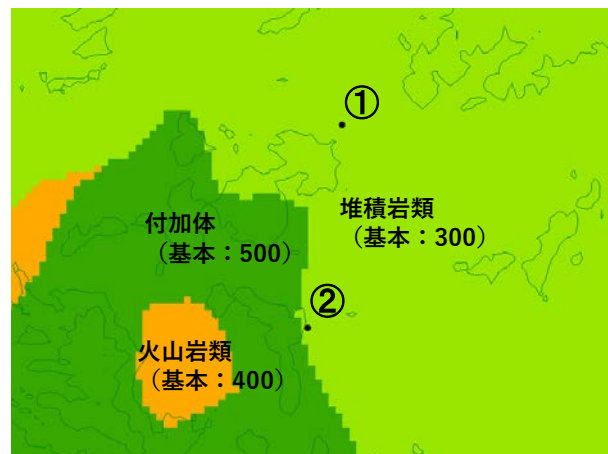


図 3.3-35 選定した 2 地点 (位置①、②) の拡大図 (地質分布図上で表示)

本項では、レファレンスケースと地質係数を変動させたケースの 2 ケースについて、陸側の水理学的影響の小さい 2 地点 (位置①、位置②) を廃棄物埋設地として設定した組み合わせの合計 4 ケースについて、地下水流動の時間変化を考慮した核種移行経路の評価、移行経路上の 1 次元核種移行解析を実施した。対象とした核種は、平成 29 年度の予察的解析の結果で、被ばく線量の寄与の大きい C-14, Cl-36, Ni-59, Mo-93, Nb-93m の 5 核種とした。

表 3.3-16 核種移行解析のケース設定

ケース名	地下水流動解析ケース	廃棄物埋設地位置
Case 1	基本ケース (A-1)	①
Case 2		②
Case 3	地質係数変動ケース (C-1)	①
Case 4		②

(2) 解析条件

解析条件は選定した地点から地表までの核種移行経路、中深度処分対象の廃棄物の放射能インベントリ、核種移行パラメータ、被ばく評価のためのパラメータを以下のように設定した。

(a) 核種移行経路

(1) で選定した 2 カ所から広域地下水流動解析の結果に基づき、粒子追跡線解析を実施し、埋設地点からの移行経路を評価した。粒子追跡線解析は Pass-trac により行い、質量 0 の仮想粒子を埋設地点から地形変化に応じた時刻（対象核種の人工バリアからの移行フラックスが終息する 7 万年後まで）に応じて放出させ、その粒子の移動経路を追跡した。このとき、地形変化に応じて地下水流速ベクトル場が時々刻々変化するため、0 年から 2 万年までは 2000 年間隔で 2 万年以降は 1 万年間隔で粒子を放出させて解析を行った。なお、廃棄物埋設地は処分坑道に空間的な広がりを持つが、本解析では地点として設定した。

1) 粒子追跡線解析コード Pass-trac の概要

Pass-trac は、3D-SEEP により得られた地下水水頭値分布を用いて地下水流路解析を行うコードである。Pass-trac では、入力された出発地点からパーティクル・トラッキングを行い、粒子がモデル外に出るまでその経路を追跡する。計算方法を以下に示す。

- ① 出発地点が含まれる要素を見つける。
- ② その要素の物性値および構成節点座標、水頭値よりその地点における動水勾配を計算する。動水勾配の計算にはアイソパラメトリック形状関数を用い、要素内部座標（ ξ 、 η 、 ζ ）の算出はニュートンラプソン法を用いる。得られた動水勾配を用いて透水係数及び間隙率から実流速を計算する。
- ③ 実流速を用いて微小時間 Δt における移動を計算する。この微小時間は、実流速および要素面積を使って次式により求める。

$$\Delta t = a \frac{\sqrt{s}}{|V|} \quad (3.3.1)$$

a : 係数（入力値、デフォルト : 0.05）

s : 要素面積

V : 実流速ベクトル

移動量 Δl は次式により求める。

$$\Delta l = \Delta t \cdot V \quad (3.3.2)$$

- ④ 新しい移動地点が求められたので、①へ戻り、以下同じ作業を繰り返す。移動地点に含まれる要素が無ければ、粒子は解析モデルの外に出たと判断する。

2) 粒子追跡線解析の解析条件

解析に用いる各地質单元に対する地質区分、透水係数及び間隙率を表 3.3-17 に示す。基盤（松前層群）と木古内層は同じ泥岩で透水係数も $1 \times 10^{-8} \text{m/s}$ であるが、間隙率が 0.02 と 0.05 で 2.5 倍の差がある。

表 3.3-17 各地質单元に対する地質区分と間隙率

地質单元	地質区分	透水係数	間隙率
基盤 (松前層群)	泥岩	$1 \times 10^{-8} \text{m/s}$	0.02
木古内層	泥岩	$1 \times 10^{-8} \text{m/s}$	0.05
厚沢部層	砂岩	$1 \times 10^{-7} \text{m/s}$	0.1

3) 移行経路解析結果

位置①における基本ケース Case 1 と地質係数を変化させたケース Case 3 の移行経路の評価結果を図 3.3-36 及び図 3.3-37 に示す。Case 1 の移行経路は、放出点は放出開始時刻の経過で隆起により+Z 方向に移動するが、X-Z 方向で見ると時間経過とともに深部へ潜り込むような経路となった。X=400m でいずれの放出時刻においても上向きに変化して上昇し、終端では鉛直上向きの経路で地表に到達する経路となった。地表までの移行距離は放出開始時刻 0 年で約 1140m、放出開始時刻 7 万年で約 1170m と約 30m およそ 3% 増加した。また、地表までの移行時間は、放出開始時刻 0 年で約 5710 年、放出開始時刻 7 万年で約 5150 年と約 10% 短縮した。これは、時間経過に伴って位置①を含む周囲の標高変化が大きくなり、12.5 万年間で平均勾配が 4.5% から 6.2% へ上昇することによって、動水勾配が大きくなって流速が増加するものと考えられる。流出点については 50m 程度の範囲内にあった。

これに対して、位置①における Case 3 の移行経路は Case 1 とほぼ変わらなかった。地表までの移行距離は放出開始時刻 0 年で約 1130m、放出開始時刻 7 万年で約 1170m と約 40m およそ 4% 増加した。また、地表までの移行時間は、放出開始時刻 0 年で約 5660 年、放出開始時刻 7 万年で約 5090 年と約 10% 短縮した。Case 1 と比較すると、いずれも 1% 程度の範囲内にあり、Case 1 と Case 3 で移行経路の特性に大きな変化はなく、地質係数の設定の違いの影響は現れなかった。

次に、位置②における基本ケース Case 2 と地質係数を変化させたケース Case 4 の移行経路の評価結果を図 3.3-38 及び図 3.3-39 に示す。Case 2 の移行経路は、放出点は同様に隆起によって時間経過に伴って上昇するが、位置①と同様に深部へ潜り込む経路となった。放出時刻が 5 万年を超えると深部で地質境界に到達して境界に沿った経路をとり、その後上昇する。上面から見た X-Y 面では、放出開始時刻の経過とともに移行経路は+Y 方向へ広がり、X=500m 程度で-Y 方向へ向かう。地表への流出点は放出開始時刻 0 年と 7 万年後で 100m 程度はなれる結果となった。地表までの移行距離は放出開始時刻 0 年で約 1210m、放出開始時刻 7 万年で約 1370m と約 160m およそ 13% 増加した。また、地表までの移行時間は、放出開始時刻 0 年で約 3830 年、放出開始時刻 7 万年で約 4580 年と約 20% 長くなった。これは、移行距離が長くなったことに加えて、比較的流速の遅い区間を通ることによるものと考えられる。

これに対して、位置②における Case 4 の経路は、Case 2 とやや異なる結果となった。上面から見た X-Y 面では、Case 2 が放出開始時刻の時間経過とともに+Y 方向へ単調に広がるのに対し、Case 4 では一旦+Y 方向へ広がるが、2 万年までに-Y 方向に戻り、6 万年以降また+Y 方向に移動するという複雑な挙動となった。Case 2 と 4 で X-Y 面の座標が異なるが、放出開始時刻 7 万年後では、Case 2 と Case 4 の流出点の場所が 200m 程度離れる結果となった。X-Z 面においても Case 2 よりも深部に潜り込む時間帯が少なく、放出開始時刻 7 万年でも地質境界に沿った移行距離は Case 2 と比較して半分程度となった。さらに上昇開始後、X=800m 程度でさらに上向きとなるが、放出開始時刻 7 万年後では X=700m 過ぎから上昇を加速し、Case 2 とは異なる経路を示した。地表までの移行距離は放出開始時刻で約 1210m、放出開始時刻 7 万年で約 1300m と約 90m およそ 7% 増加したが、Case 2 の増加率の半分程度であった。また、地表までの移行時間は放出開始時刻 0 年で約 3820 年、放出開始時刻 7 万年後で約 4320

年と約 13%長くなったが、これも Case 2 の増加率より小さくなった。地質係数を基本ケースの 500 から 600 に変更した西側に隣接する付加体と、位置②の 300 から 200 に変更した堆積岩で時間経過とともに地形勾配が大きくなり、移行経路への影響が大きいと予想された。地表までの移行距離、移行時間の減少幅は 5%程度であったが、流出点が 200m 程度異なる結果となった。

位置①と②を比較すると、①の方が地質係数の不確かさがあつたとしても、地形変化による影響を受けにくい地点といえる。

なお、本粒子追跡線解析は 400m メッシュの広域地下水流動解析結果に基づいて行われたものであり、本来はサイトスケールの細かいメッシュを用いた地下水流動解析に基づいて実施されるものである。

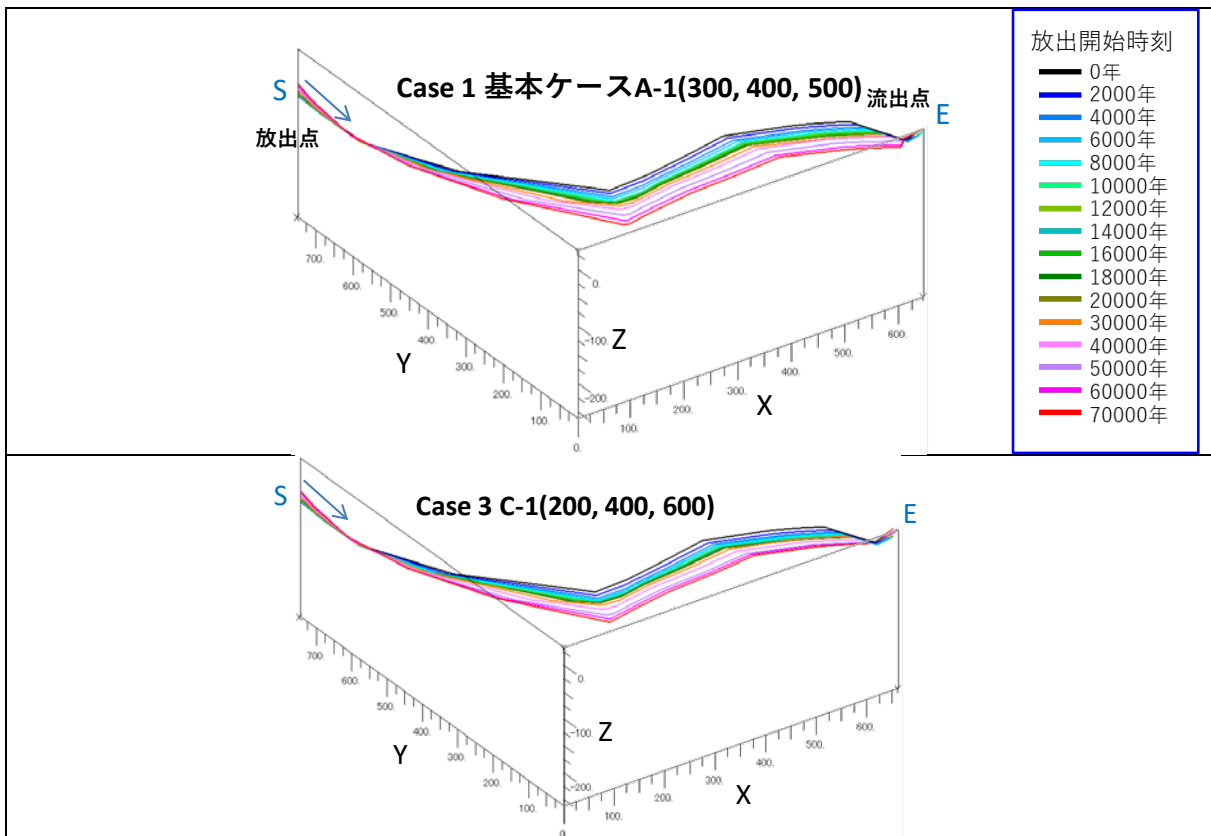


図 3.3-36 地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較（鳥瞰図・位置①）

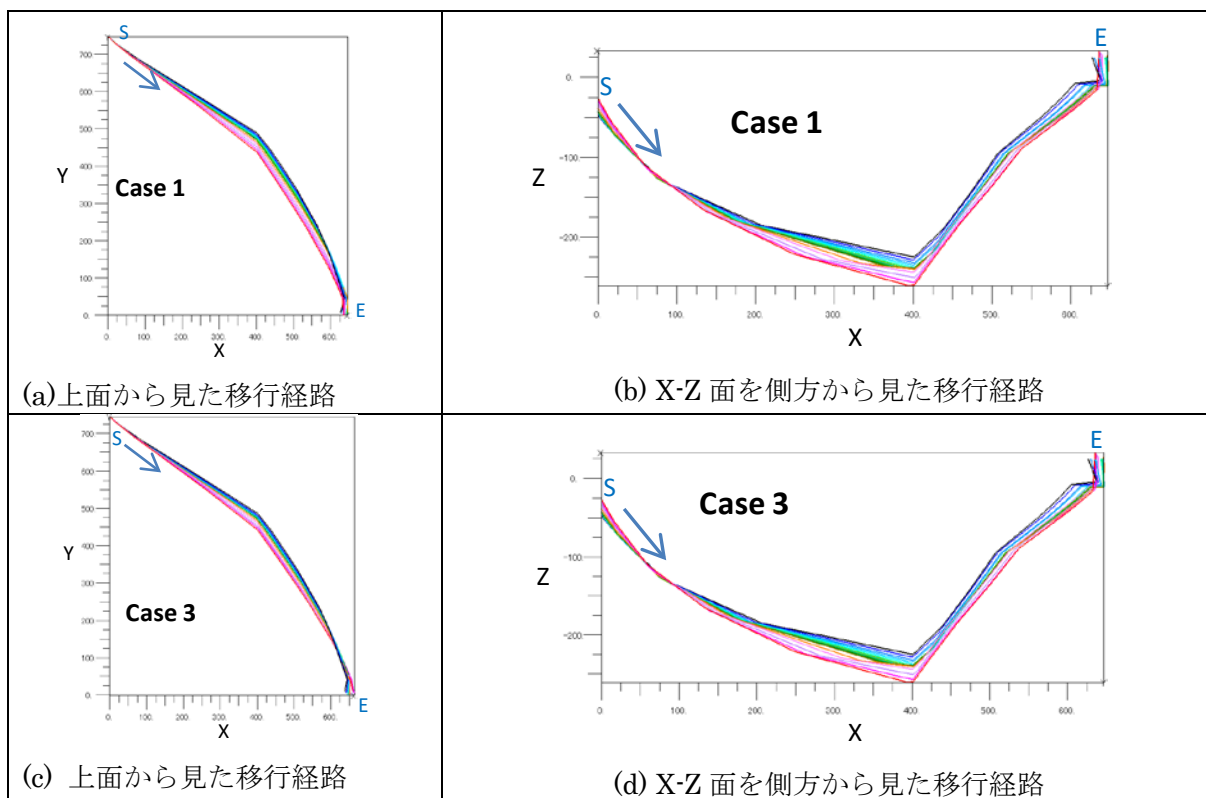


図 3.3-37 地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較 (X-Y、X-Z・位置①)

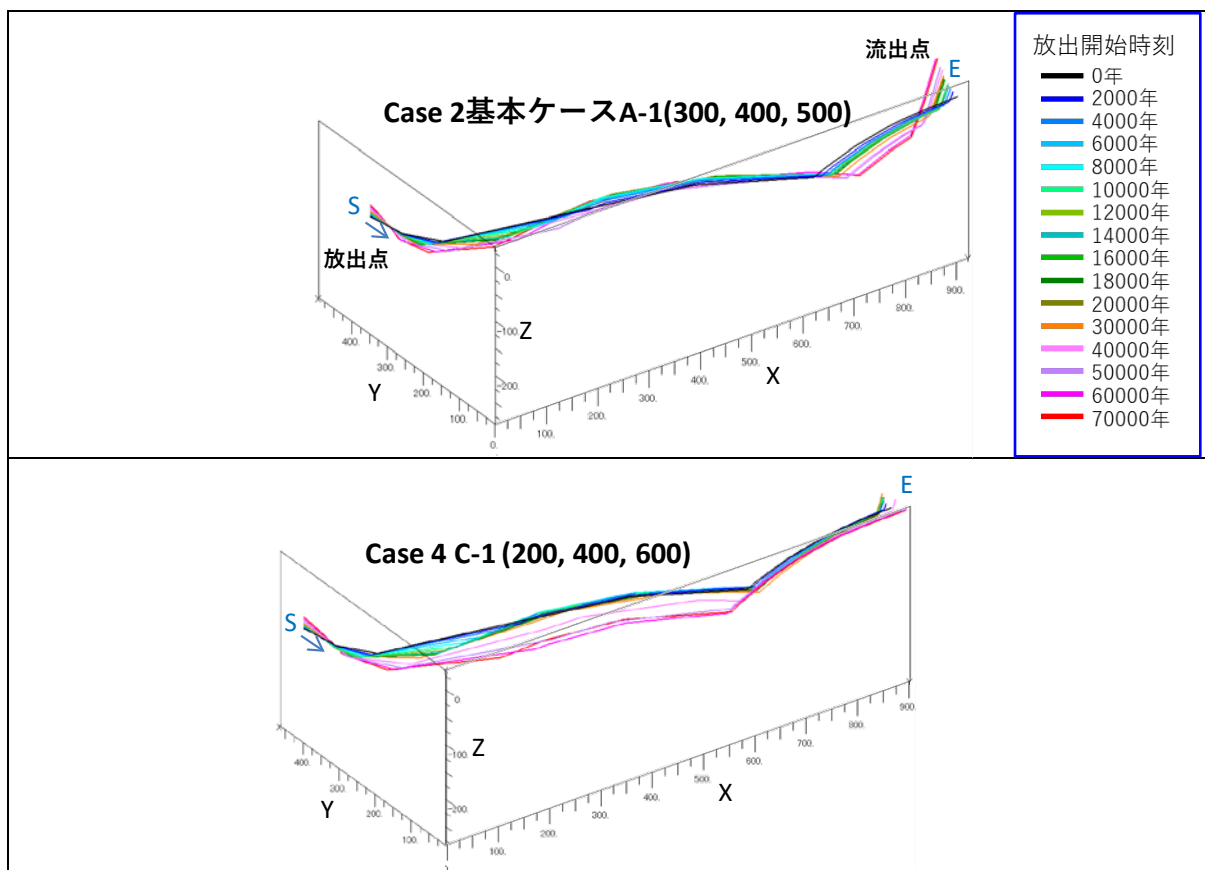


図 3.3-38 地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較 (鳥瞰図・位置②)

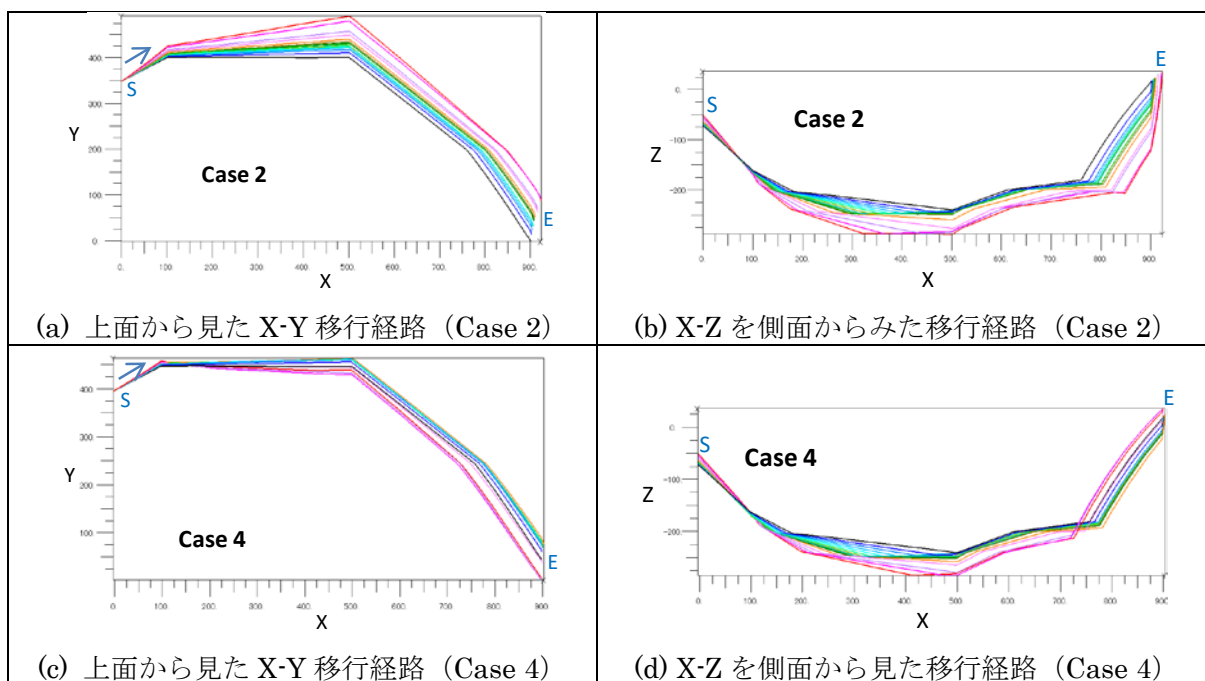


図 3.3-39 地質係数を変化させたケースでの移行経路の比較 (X-Y, X-Z・位置②)

以上の結果から、Case 1~4 の地表までの移行距離の時間変化を図 3.3-40 に示す。距離 0 が廃棄物埋設地であり、棒グラフの上端が地表への流出点となり、経路上の地質を泥岩および砂岩に区分して示した。廃棄物埋設地を位置①とした Case 1 では、放出開始時刻 0 年では、移行距離約 1140m のうちはじめの約 980m が泥岩の区間であり、その後の 160m 区間が砂岩を通過して、地表に流出することを示している。放出開始時刻の時間経過に伴って、全体の移行距離がやや増加していくが、砂岩を通る区間が短縮される傾向となった。地質係数を変化させた Case 3 においてもその傾向は変わらなかった。廃棄物埋設地を位置②とした Case 2 ではすべての区間が泥岩であるが、基盤である松前層群と木古内層の 2 つから構成される。放出開始時刻の時間経過に伴って松前層群の移行距離が増加し木古内層の移行距離が減少する傾向となった。地質係数を変動させた Case 4 では傾向は変わらないが、上述したように、Case 2 よりも全体の移行距離の増加は抑制されており、松前層群ではなく、木古内層の区間が増加する結果となった。

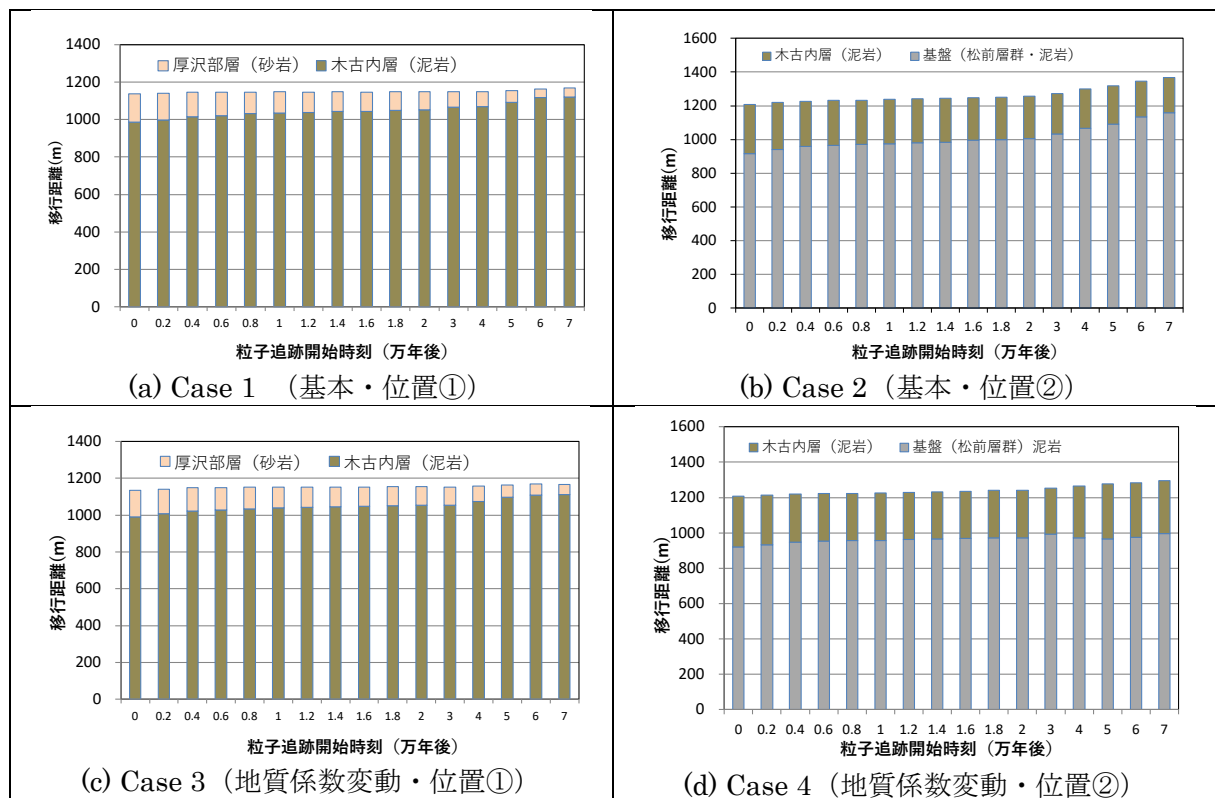


図 3.3-40 Case 別の移行距離の時間変化

(b) 評価対象核種のインベントリ

評価対象核種は平成 29 年度事業において、中深度処分を対象として原子力学会標準などを参考に予備解析を実施し、代表的な 70 核種を対象に被ばく線量評価までを行ったところ、河川水利用経路において被ばく線量が高く、C-14, Cl-36, Ni-59, Mo-93 が重要核種として抽出された。系列核種も評価したが、上記核種よりも被ばく線量への寄与は 1 桁以上小さいことから、重要核種としては抽出されなかった。上記 4 核種に Mo-93 の子孫核種である Nb-93m を加えた 5 核種を評価対象核種としてとりあげた。本年度の評価においても、同様に、上記 5 核種を対象として評価を実施した。

対象とする核種に対し、電気事業連合会が公表した余裕深度処分対象廃棄物に関する基本データ集⁽¹⁷⁾から核種量を抽出した。廃棄体グループ別の対象 5 核種のインベントリを表 3.3-18 に示す。また、各廃棄体グループ別の廃棄体発生量を表 3.3-19 に示す。廃棄体ごとの核種濃度は上記データから算出した。

表 3.3-18 評価対象核種のインベントリ（廃棄体グループ別）

核種	半減期	放射能量 [Bq]							
		原子力発電所					再処理施設・MOX燃料		
		SUS	Zr	黒鉛	樹脂類	廃液	SUS	樹脂類	廃液
		BPG_st	BPG_zr	BPG_gr	BPG_ot	BPG_no	CYC_st	CYC_ot	CYC_no
C-14	5.70E+3y	5.9E+15	6.6E+13	1.5E+14	7.2E+13	3.8E+12	5.3E+14	3.0E+11	2.3E+06
Cl-36	3.01E+5y	7.0E+12	9.4E+09	4.7E+11	1.1E+11	1.2E+09	2.7E+12	6.0E+09	4.7E+04
Ni-59	1.01E+5y	1.3E+16	1.9E+13	4.5E+11	2.4E+14	1.3E+13	2.6E+14	1.8E+12	4.3E+04
Nb-93m	16.13y	7.4E+13	6.2E+12	3.3E+06	7.9E+10	1.2E+07	7.6E+13	0.0E+00	0.0E+00
Mo-93	4.0E+3y	2.2E+14	1.7E+11	1.1E+09	8.4E+11	2.4E+08	2.6E+12	1.4E+10	2.9E+03

表 3.3-19 廃棄体グループ別の廃棄体発生量

		原子力発電所					再処理施設・MOX燃料		
		SUS	Zr	黒鉛	樹脂類	廃液	SUS	樹脂類	廃液
		BPG_st	BPG_zr	BPG_gr	BPG_ot	BPG_no	CYC_st	CYC_ot	CYC_no
廃棄体発生量	重量(ton)	8782	744	1514	5235	1328	5775	11601	177
	体積(m ³)	1379	114	865	7144	1071	892	2768	98

(c) 埋設施設条件

埋設施設については、以下のように条件を設定した。原子力学会標準⁽¹⁶⁾及び菅谷ほか(2010)⁽¹⁸⁾に示された埋設施設における人工バリアの寸法設定値を表 3.3-20 に示す。原子力学会標準⁽¹⁶⁾と菅谷ほか(2010)⁽¹⁸⁾において、想定する人工バリアの各層の厚さに大差はなく、ここでは、原子力学会標準⁽¹⁶⁾を参考に、コンクリートピット及び低拡散層の厚さを 0.5 m、低透水層の厚さを 1 m と設定した。

表 3.3-20 中深度処分埋設施設における人工バリアの寸法設定値

パラメータ		設定値	
		原子力学会標準	菅谷ほか(2010)
廃棄体層 [m]	幅	10	9.2
	高さ	10	7.4
	長さ	100	100
セメント系材料層厚さ [m]	コンクリートピット	0.5	0.7
	低拡散層	0.5	0.6
ベントナイト系材料層厚さ [m]	低透水層	1	1

原子力発電所起源の廃棄体 (BPG) は、図 3.3-32 の断面図から、1.6m□×1.6m 容器を、横 5 列×高さ 4 列 (幅 8 m×高さ 6.4 m×奥行 1.6 m) の 20 個を 1 組として、坑道長さ方向に何列できるかを、各廃棄体グループの廃棄体個数から求め (余りがある場合は 1 列とした)、廃棄体定置領域の長さを算出した。同様に、再処理工場・MOX 工場起源の廃棄体 (CYC) は、1.6m□×1.2m 容器を、横 5 列×高さ 5 列 (幅 8 m×高さ 6 m×奥行 1.6 m) の 25 個を 1 組として、坑道長さ方向に何列できるかを、各廃棄体グループの廃棄体個数から求め、廃棄体定

置領域の長さを算出した。また、各領域の体積及び表面積は断面方向のみの領域を対象として算出した。

表 3.3-21 各バリアのパラメータ設定値

バリア	パラメータ	値
コンクリートピット層	厚さ [m]	0.5
	間隙率 [-]	0.19
	密度 [g/cm ³]	2.6
低拡散層（健全部）	厚さ [m]	0.5
	間隙率 [-]	0.19
	密度 [g/cm ³]	2.6
ベントナイト層	厚さ [m]	1.0
	間隙率 [-]	0.4
	密度 [g/cm ³]	2.7

(d) 評価コード及び評価モデル

放射性核種の移行及び被ばく線量の評価には、確率論的安全評価コード GSRW-PSA (Generic Safety Assessment Code for Geologic Disposal of Radioactive Waste for Probabilistic Safety Assessment) ⁽¹⁹⁾を用いた。GSRW-PSA は、確率論的解析の対象とするパラメータを生成するパラメータサンプリングコード (Latin Hypercube Sampling : LHS⁽²⁰⁾)、地下水移行シナリオの決定論的評価用コード (GSRW) ⁽²¹⁾、及び統計解析コード (Statistical POstProcessor : SPOP⁽²²⁾, ⁽²³⁾) から構成されるコードシステムである。なお、本評価に使用した GSRW-PSA は、これまで受託事業^{(24), (25), (26), (27), (28), (29), (30), (31), (32)}等により原子力機構が拡張・整備を行ってきたものである。この拡張した GSRW-PSA における地下水移行シナリオの決定論的評価の機能を使用することにより、基本的には、原子力学会標準⁽¹⁶⁾において示された「処分システムにおける核種移行及び被ばく経路の評価手法」と同等の評価を行うことが可能である。

具体的には、廃棄体層からの核種の溶出やセメント系材料層及びベントナイト系材料層内の放射性物質の濃度の評価には、ソースタームモデルを、岩盤地下水中の放射性物質の濃度の評価には、天然バリアモデルの多孔質媒体モデルを、被ばく線量評価には、生物圏モデルを使用した。

ただし、廃棄体層における放射化金属等からの核種の溶出に係る廃棄体層からの核種溶出モデルに関しては、原子力学会標準⁽¹⁸⁾の次式（一部表式を改変）ではなく、

$$R^i(t) = A_0^i \eta \exp[-(\lambda^i + \eta)t] \quad (3.3-1)$$

$R^i(t)$: 時間 t における核種 i の放出率 [Bq/y]

A_0^i : 核種 i の初期放射エネルギー [Bq]

η : 溶出率 [1/y]

λ^i : 核種 i の崩壊定数 [1/y]

平成 19 年の GSRW-PSA の拡張⁽²⁴⁾において整備した次式の溶出期間モデルにより評価した。なお、本モデルは第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾における金属廃棄物からの溶出モデルと同等である。

$$R^i(t) = \begin{cases} A^i(t)/T & (0 \leq t \leq T) \\ 0 & (T < t) \end{cases} \quad (3.3-2)$$

T : 溶出期間 [y] ($\eta = 1/T$)

$A^i(t)$: 時間 t における核種 i の放射エネルギー [Bq]

ただし、 $\frac{dA^i(t)}{dt} = -\lambda^i A^i(t) + \sum_p \lambda^p A^p(t)$

λ^p : 親核種 p の崩壊定数 [1/y]

$A^p(t)$: 時間 t における親核種 p の放射エネルギー [Bq]

式(3.3-2)を溶出期間 T 未満の時間 t 及び単独核種の場合について、式(3.3-1)と同様に核種 i の初期放射能 A_0^i 及び溶出率 η を用いて書き直すと、次のようになる。

$$R^i(t) = A_0^i \eta \exp[-\lambda^i t] \quad (3.3-3)$$

(d) 核種移行パラメータ

1) 廃棄体層からの溶出率及び溶出期間

放射化金属等の溶出率の既往文献における設定値を表 3.3-22 に整理した。中深度処分（余裕深度処分）に関連した既往文献としては、原子力学会標準⁽¹⁶⁾、菅谷ほか（2010）⁽¹⁸⁾、辻ほか（2015）⁽³⁴⁾を参照した。また、ステンレス鋼及びジルカロイの溶出率に関しては、TRU 廃棄物の地層処分に係る安全評価（TRU 廃棄物処分概念検討書⁽³⁵⁾、第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾）に加えて、北村ほか（2016）⁽³⁶⁾によりまとめられた、諸外国の使用済燃料直接処分に係る安全評価における構造材金属に対する溶出率を参考に、SR-site⁽³⁷⁾、TURVA-2012⁽³⁸⁾、NAGRANAB 13-37⁽³⁹⁾、Dossier 2005⁽⁴⁰⁾における設定値を参照した。さらに、黒鉛に関しては、C-14 のガス状放出に関してではあるものの、NDA（2014）⁽⁴¹⁾を参考にした。なお、溶出期間は溶出率の逆数として算出した。原子力学会標準⁽¹⁶⁾及び菅谷ほか（2010）⁽¹⁸⁾では、金属廃棄物の種類までは明示されていないものの、ほぼ同様の値が設定されており、諸外国の安全評価における溶出率の設定値よりも比較的小さい値となっている。

ステンレス鋼の溶出率に関しては、SR-site⁽³⁷⁾及び TURVA-2012⁽³⁸⁾における $1 \times 10^{-3} \text{ y}^{-1}$ のオーダーから、第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾及び Dossier 2005⁽⁴⁰⁾における $1 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$ のオーダーの値が設定されている。

ジルカロイの溶出率に関しては、辻ほか（2015）⁽³⁴⁾において比較的小さい値が設定されている以外は、TURVA-2012⁽³⁸⁾における $1 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$ のオーダーから、第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾、NAGRA NAB 13-37⁽³⁹⁾及び Dossier 2005⁽⁴⁰⁾における $1 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$ のオーダーの値が設定されている。

黒鉛の溶出率に関しては、C-14 のガス状放出に関して、速い放出成分と遅い放出成分に分けて、その放出率（溶出率）が設定されており、遅い成分の場合でもステンレス鋼やジルカロイに比べて大きな溶出率となっている⁽⁴¹⁾。なお、速い放出成分に関しては、その発生割合が 1.5×10^{-4} と極めて低い⁽⁴¹⁾。

以上の放射化金属等の溶出率の既往文献における設定値を基に設定した、本評価における金属廃棄物等の溶出率及び溶出期間の設定値と設定根拠を表 3.3-23 に示す。ステンレス鋼に関しては、廃棄物ごとに含まれるステンレス鋼すべてに厚さを設定することが困難なため、菅谷ほか（2010）⁽¹⁸⁾で考慮されているふげんの放射化した金属の部材厚さは約 1mm～100mm を参考に、保守的に 1mm と仮定し、腐食速度は、保守的な値として第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾の値を設定し、溶出率（溶出期間）を算出した。また、ジルカロイに関しては、被覆管と同程度の厚さとして保守的に 0.5mm と仮定し、腐食速度は、保守的な値として第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾の値を設定し、溶出率（溶出期間）を算出した。黒鉛に関しては、速い放出成分に関しては、その発生割合が 1.5×10^{-4} と極めて低いこと⁽⁴¹⁾から、すべての遅い放出成分の放出率を溶出率として設定した。

本検討においてステンレス鋼及びジルカロイの溶出率の算出に用いた金属の腐食速度は、第 2 次 TRU レポート⁽³³⁾に示された値であり、初期の速い腐食速度であると考えられるが、時間の経過とともに減少することが知られているため、ここでの浸出率は保守的な設定となっている可能性がある。また、黒鉛の溶出率に関してもデータの不足によりガスの放出率のモデルパラメータより設定しているため、不確実性が大きく、保守的な設定となっている可能性がある。

表 3.3-22 放射化金属等の溶出率の既往文献における設定値

母材	溶出率 [1/y]	溶出期間 [y]	腐食速度 [nm/y]	厚さ [mm]	酸化皮膜割合 [-]	設定根拠	文献
金属廃棄物	3.3E-06	3.00E+05	30	9	0	基本シナリオ：腐食速度と放射化金属廃棄物の厚さを踏まえて想定（例えば、0.03 μm/yで厚さ9mm）。他の文献と異なり、両面からの腐食ではなく、片面からの腐食を想定した値となっている。	原子力学会標準 (16)
	3.3E-05	-	-	-	-	感度解析：溶出率を適用し難い廃棄物の存在を考慮し、基本シナリオより1桁大きな値に設定。	
	5.0E-06	2.00E+05	30	10	0	原子炉本体の厚さ10mmという仮定と既往文献における放射化金属の腐食速度から求めた溶出期間を丸めて評価用の溶出期間から溶出率を設定。	菅谷ほか (2010) (17)
	5.0E-05	2.00E+04	30	1	0	制御棒の厚さ1mmという仮定と既往文献における放射化金属の腐食速度から求めた溶出期間を丸めて評価用の溶出期間から溶出率を設定。	
ステンレス鋼	2.6E-06	3.82E+05	30	22.9	0	エンドピース	TRU廃棄物処分概念検討書 (34)
	1.2E-04	8.50E+03	20	0.34	0	エンドピース：母材の厚さに関しては明示されていないため、溶出期間と腐食速度より求めた。	第2次TRUレポート (32)
	1.0E-03	1.00E+03	-	-	-	ステンレス鋼の腐食速度を基に溶出率を設定。不確実性を考慮して1E-4～1E-2[1/y]の範囲を設定している。	スウェーデン (SR-site) (36)
	1.0E-03	1.00E+03	-	-	-	その他の金属として、構造材の最小厚さと腐食速度から設定。	フィンランド (TURVA-2012) (37)
	4.0E-04	2.50E+03	-	-	-	ステンレス鋼構造材の最小厚さと腐食速度から設定。	Dossier 2005 (39)
ジルカロイ	1.3E-04	7.60E+03	30	0.57	0.2	ハル	TRU廃棄物処分概念検討書 (34)
	8.8E-05	1.14E+04	20	0.57	0.2	ハル	第2次TRUレポート (32)
	9.3E-06	1.08E+05	20	4.3	0	基本ケース：第2次TRUレポートの腐食速度及びびふげんの圧力容器の厚さから設定。	辻ほか (2015) (33)
	2.8E-06	3.58E+05	6	4.3	0	ケース1：Zr-2.5wt%Nb合金の試験期間1年時における腐食速度	
	1.7E-06	5.97E+05	3.6	4.3	0	ケース2：Zr-2.5wt%Nb合金の試験期間2年時における腐食速度	
	1.0E-07	1.00E+07	2.2E-01	4.3	0	ケース3：腐食期間1万年時点の腐食速度	
	1.0E-09	1.00E+09	2.2E-03	4.3	0	ケース4：腐食期間10万年時点の腐食速度	
	1.0E-10	1.00E+10	2.2E-04	4.3	0	ケース5：腐食期間100万年時点の腐食速度	
	1.0E-04	1.00E+04	-	-	-	ジルカロイ被覆管として、構造材の最小厚さと腐食速度から設定。	TURVA-2012 (37)
	3.3E-05	3.00E+04	10	0.6	0	ジルカロイ被覆管の値が構造材中最も保守的として、ジルカロイ被覆管の厚さと腐食速度から設定。	NAGRA NAB 13-37 (38)
3.0E-05	3.33E+04	-	-	-	ジルカロイ被覆管の最小厚さと腐食速度から設定。	Dossier 2005 (39)	
黒鉛	5.00E+01	0.02	-	-	-	C-14のガス状放出に関して、速い放出成分の放出率として評価された値。ただし、速い放出成分の割合は1.5E-4である。	NDA (2014) (40)
	2.50E-03	400	-	-	-	C-14のガス状放出に関して、遅い放出成分の放出率として評価された値。ただし、遅い放出成分の割合は0.05である。	

表 3.3-23 本評価における金属廃棄物等の溶出率及び溶出期間の設定値と設定根拠

母材	溶出率 [1/y]	溶出期間 [y]	腐食速度 [nm/y]	厚さ [mm]	酸化皮膜割合 [-]	設定根拠
ステンレス鋼	4.0E-05	2.50E+04	20	1	0	廃棄物ごとに含まれるステンレス鋼すべてに厚さを設定することが困難なため、保守的に1mmと仮定した。腐食速度は、保守的な値として第2次TRUレポート ⁽³²⁾ の値を設定した。
ジルカロイ	8.0E-05	1.25E+04	20	0.5	0	被覆管と同程度の厚さとして、保守的に0.5mmと仮定した。腐食速度は、保守的な値として第2次TRUレポート ⁽³²⁾ の値を設定した。
黒鉛	2.50E-03	400	-	-	-	NDA (2014) ⁽⁴⁰⁾ におけるC-14のガス状放出のモデルパラメータのうち、速い成分の放出比が極めて低いため、遅い成分の値を設定した。

2) 溶解度

溶解度は、セメント系材料層（コンクリートピット、低拡散層）のみに考慮し、緩衝材では保守的に全ての核種は沈澱しないものと仮定した。セメント系材料層（コンクリートピット、低拡散層）における溶解度を表 3.3-24 に示す。溶解度は、第 2 次 TRU レポートの核種移行解析データセット (RAMDA)⁽⁴²⁾ に示された、降水系地下水に対する最大値を設定した。また、RAMDA⁽⁴²⁾ に値が掲載されていない元素に関しては可溶性とした。

表 3.3-24 セメント系材料層（コンクリートピット、低拡散層）における溶解度

元素	溶解度 [mol/m ³]	備考（設定根拠）
	降水系地下水	
C（有機）	可溶性	第2次TRUレポートの核種移行解析データセット（RAMDA）に示された、降水系地下水の最大値を設定した。
Cl	可溶性	
Ni	5E-01	
Nb	5E+01	
Mo	1E+00	

3) 実効拡散係数

セメント系材料及びベントナイト系材料に対する実効拡散係数は、原子力学会標準⁽¹⁶⁾及び菅谷ほか（2010）⁽¹⁸⁾の設定根拠となっている RAMDA⁽⁴²⁾ を基に設定した。また、岩盤の実効拡散係数は、菅谷ほか（2010）⁽¹⁸⁾を参考に、すべての元素に対して $9.4 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ （間隙率 0.47）を設定した。

表 3.3-25 セメント系材料層（コンクリートピット、低拡散層）における実効拡散係数

	コンクリートピット	低拡散バリア健全部	備考（出典や設定根拠）
間隙率	0.19	0.19	第2次TRUレポートの核種移行解析データセット（RAMDA）を基に設定。自由水中の拡散係数はトリチウムの25℃における値。コンクリートピットは「ひび割れのあるセメントモルタル」、低拡散バリア健全部は「ひび割れの無いセメントモルタル」から設定した。
自由水中の拡散係数 [m ² /s]	2.27E-09	2.27E-09	
実効拡散係数 [m ² /s]	4.3E-10	1.4E-11	

表 3.3-26 ベントナイト系材料層（低透水層）における実効拡散係数

元素	降水系地下水	備考（設定根拠）
C（有機）	3E-10	第2次TRUレポートの核種移行解析データセット（RAMDA） ⁽⁴¹⁾ を基に設定。主たる化学特性により、中性、陽イオン、陰イオンごとに設定した。ただし、RAMDAでは、25℃における設定値がないため、60℃のものを設定した。
Cl	4E-11	
Ni	3E-10	
Nb	3E-10	
Mo	4E-11	

4) 収着分配係数

収着分配係数は、表 3.2-7 に示すように、各構成要素に対して元素別に RAMDA⁽⁴²⁾ に示された降水系地下水で最も保守的な値となるよう設定した。廃棄物埋設地を位置①に設定した Case 1 及び Case 3 では、図 3.3-40 に示したように、移行経路上の地質は泥岩および砂岩であ

ること、また、経路上の水質は降水系地下水のみであることから、それぞれの岩種の降水系地下水について設定した。

表 3.3-27 地下水水質別収着分配係数

元素	分配係数 (m ³ /kg)					備考
	降水系地下水					
	コンクリート ピット	低拡散層	ベントナイト	泥岩	砂岩	
C (有機)	2.50E-04	2.50E-04	0	1.00E-04	1.00E-04	第2次TRUレポートの核種移行解析データセット (RAMDA) に示された、降水系地下水の最大値を設定した。
Cl	0	0	0	1.00E-04	1.00E-04	
Ni	1.25E-03	1.25E-03	5.00E-02	1.00E-01	1.00E-02	
Nb	0	0	1.00E-01	1.00E+00	1.00E-01	
Mo	2.50E-03	2.50E-03	0	1.00E-04	1.00E-04	

(3) 解析結果

(a) 人工バリアからの移行フラックス

図 3.3-41 に Case 1~4 における人工バリアからの移行フラックスの時間変化を示す。すべてのケースで廃棄物埋設地は降水系地下水が継続して維持されるため、ケース間に違いは生じていない。C-14 と Cl-36 は 3 年程度から 1×10^5 Bq/y を超えるフラックスを示し、約 500 年後にピークを形成した。Ni-59 は約 5000 年後にピークを形成し、約 2 万年を過ぎるまでほぼ同じ値を継続した。Mo-93 は約 6,000 年後にピークを形成する結果となった。

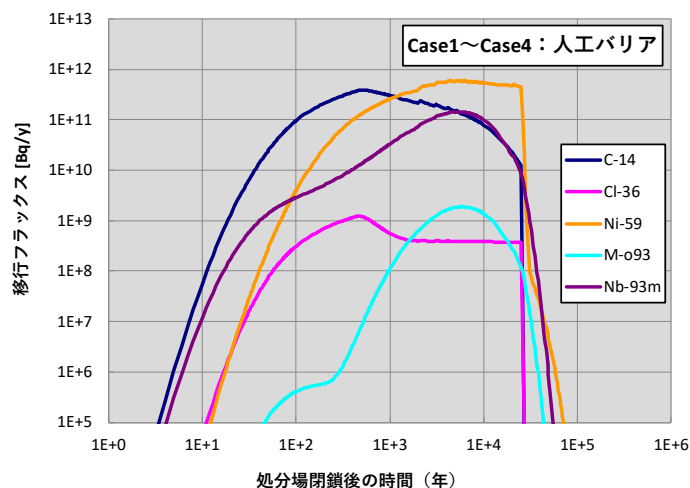


図 3.3-41 人工バリアからの移行フラックスの時間変化 (Case 1~4)

(b) 天然バリアから地表への移行フラックス

図 3.3-42 にケース別の天然バリアからの移行フラックスの時間変化を示す。また、ケース別の各核種のピーク発生時間とそのフラックスの大きさを表 3.3-28 に示す。

Case 1 では、1 万年後に C-14 のフラックスが 1Bq/y を超え、34,000 年後にピークの値 2.05×10^9 Bq/y を示し、およそ 10 万年後に 1Bq/y を下回る結果となった。図 3.3-43 に Case 1 の C-14, Cl-36, Mo-93 の放出開始時刻別の移行フラックスの時間変化を示す。C-14 については人工バリアからの移行フラックスのピークが約 500 年後に生じており、それを受けて 2000 年までに人工バリアから放出されたフラックスが主にピーク形成に寄与している。Cl-36 については C-14 よりやや遅れて 1 万年を少し超えた時点から 1Bq/y を超え、ピークを示すのが約 47,000 年後と C-14 より約 13,000 年遅くなっている。人工バリアから Cl-36 は C-14 と同様に約 500 年後にピークを示すが、その後 10^8 Bq/y オーダーで約 3 万年まで放出を維持している。これを受けて放出時刻別のフラックスは 2000 年以降ほぼ同じ値を示し、これらの合算で約 47,000 年後にピークを形成する結果となった。Mo-93 及び Nb-93m については、約 2 万年から 1Bq/y を超えて上昇を続け、3.6 万年後にピークフラックスを示してその後減少し、約 9 万年に 1Bq/y を下回る結果となった。また、Ni-59 については、人工バリアからの移行フラックスは大きいものの、移行経路上の Ni に対する収着分配係数が比較的大きいため、天然バリアからは 1Bq/y を超える移行フラックスはない結果となった。

Case 1 に対して地質係数を変動させた Case 3 では、Case 1 とほぼ同様の値を示し、最大で C-14 のピークフラックスが Case 1 に比べて約 1.5% 増加した。粒子追跡線解析において移行時間の差として生じた約 1% の差が反映されたものと考えられる。

次に Case 2 では、C-14 は約 15,000 年から 1Bq/y を超え、約 46,000 年でピークを示し、 3.04×10^8 Bq/y となった。Cl-36 は C-14 にやや遅れて 1Bq/y を超え、約 6.2 万年後にピークを示し、 2.8×10^8 Bq/y となった。

核種移行経路評価で地表までの移行時間が長かった Case 1 (放出開始時刻 0 年で約 5,710 年) と比較すると、Case 2 (放出開始時刻 0 年で約 3,830 時間) では、移行経路上のほとんどを占める基盤 (松前層群) の間隙率が 0.02 と Case 1 のほとんどを占める木古内層の間隙率 0.05 に対して 40% 程度小さくなっているため、C-14 のピーク発生時刻が約 12,000 年遅れる結果となった。

Case 2 に対して地質係数を変動させた Case 4 では、C-14 のピーク発生時間は Case 2 とほとんど変わらないが、ピークフラックスは 17% 程度増加した。一方、Cl-36 のピーク発生時間が 2000 年程度早く出現したが、ピークフラックスの増加は 6% 程度にとどまった。また、Mo-93 のピークフラックスは約 1000 年早く出現し、ピークフラックスは 32% 程度増加した。Case 2 は時間経過とともに移行距離が増加する際に、間隙率の小さい基盤 (松前層群) を通る区間が増加し、間隙率の大きい木古内層を通る区間が減少することで、核種移行が抑制される結果となったのに対し、Case 4 では Case 2 に比べ、時間経過とともに全体の移行距離の増加が抑制され、間隙率の小さい基盤 (松前層群) を通る区間の増加も抑えられたことから、核種移行が抑制されるような効果はより小さくなった。

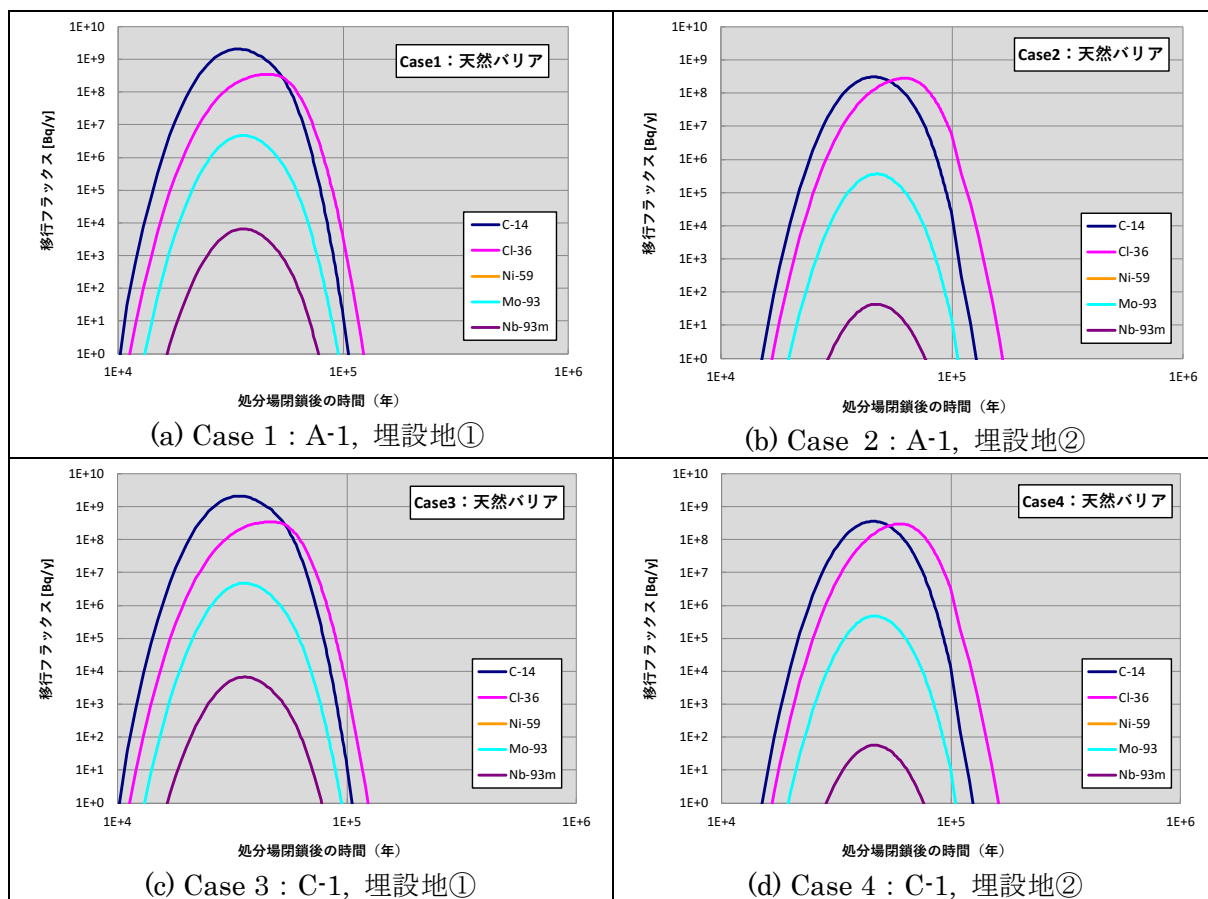


図 3.3-42 Case 別の天然バリアからの移行フラックスの時間変化

表 3.3-28 各ケースでの核種別のピーク発生時間と移行フラックス

Case 1		
核種	ピーク時間 [年]	移行フラックス [Bq/y]
¹⁴ C	3.40E+04	2.05E+09
³⁶ Cl	4.70E+04	3.48E+08
⁵⁹ Ni	7.20E+06	2.11E-25
⁹³ Mo	3.60E+04	4.73E+06
^{93m} Nb	3.60E+04	6.60E+03

Case 2		
核種	ピーク時間 [年]	移行フラックス [Bq/y]
¹⁴ C	4.60E+04	3.04E+08
³⁶ Cl	6.20E+04	2.80E+08
⁵⁹ Ni	9.90E+06	6.28E-40
⁹³ Mo	4.70E+04	3.63E+05
^{93m} Nb	4.70E+04	4.31E+01

Case 3		
核種	ピーク時間 [年]	移行フラックス [Bq/y]
¹⁴ C	3.40E+04	2.08E+09
³⁶ Cl	4.70E+04	3.46E+08
⁵⁹ Ni	7.20E+06	2.07E-25
⁹³ Mo	3.60E+04	4.78E+06
^{93m} Nb	3.60E+04	6.68E+03

Case 4		
核種	ピーク時間 [年]	移行フラックス [Bq/y]
¹⁴ C	4.60E+04	3.57E+08
³⁶ Cl	6.00E+04	2.97E+08
⁵⁹ Ni	9.80E+06	6.56E-39
⁹³ Mo	4.60E+04	4.79E+05
^{93m} Nb	4.70E+04	5.68E+01

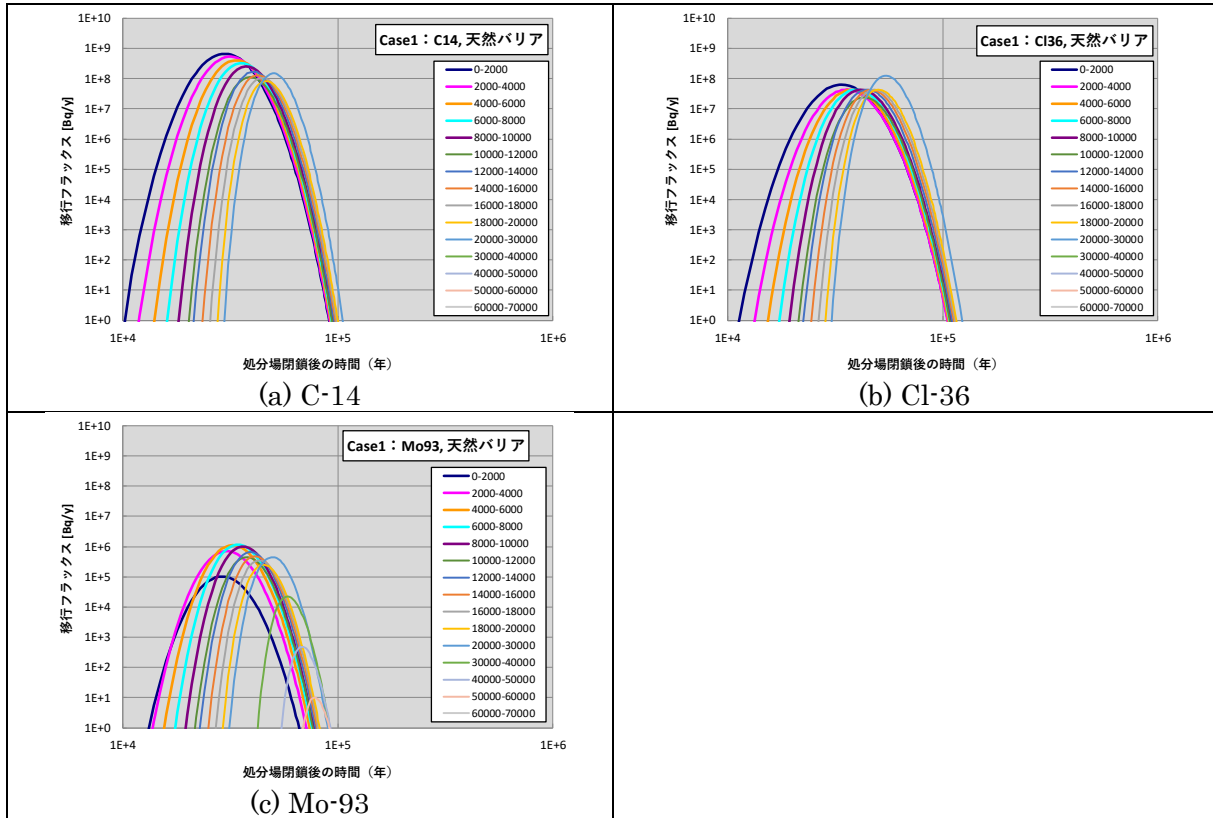


図 3.3-43 Case 1 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス

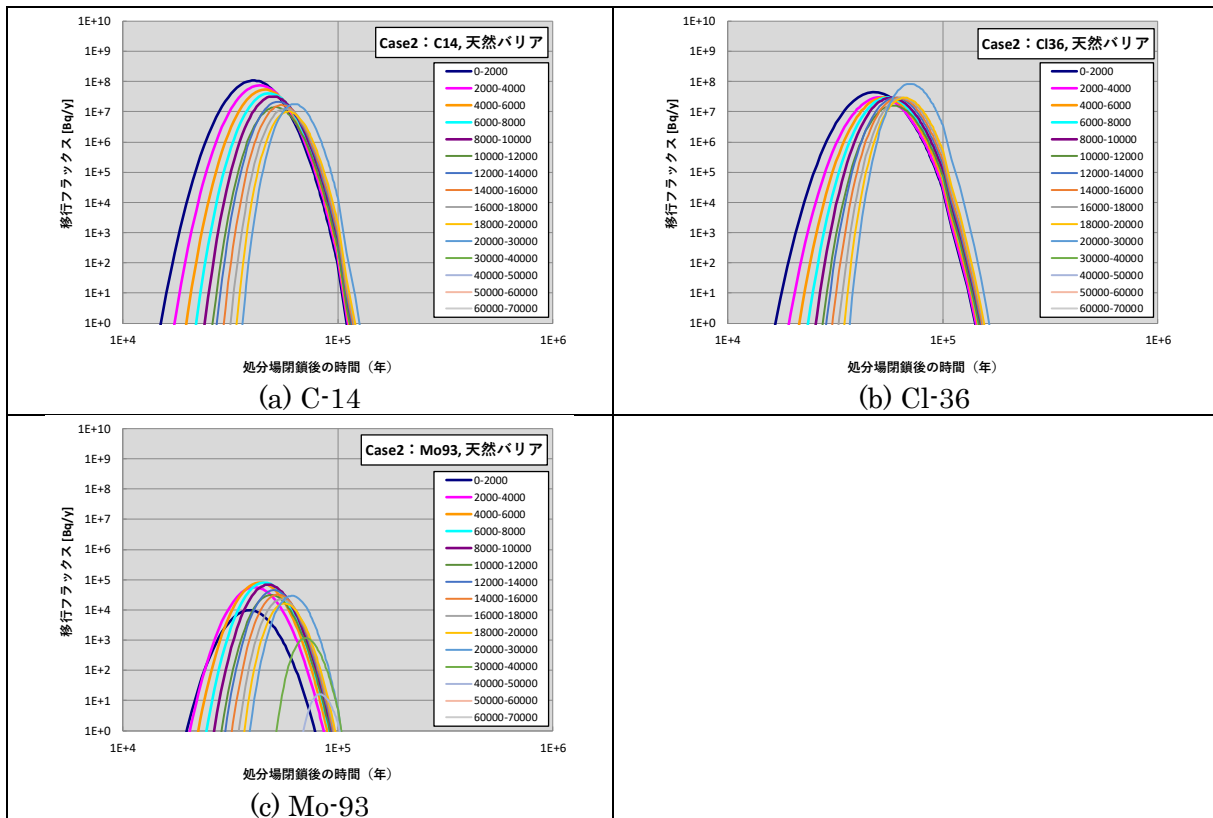


図 3.3-44 Case 2 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス

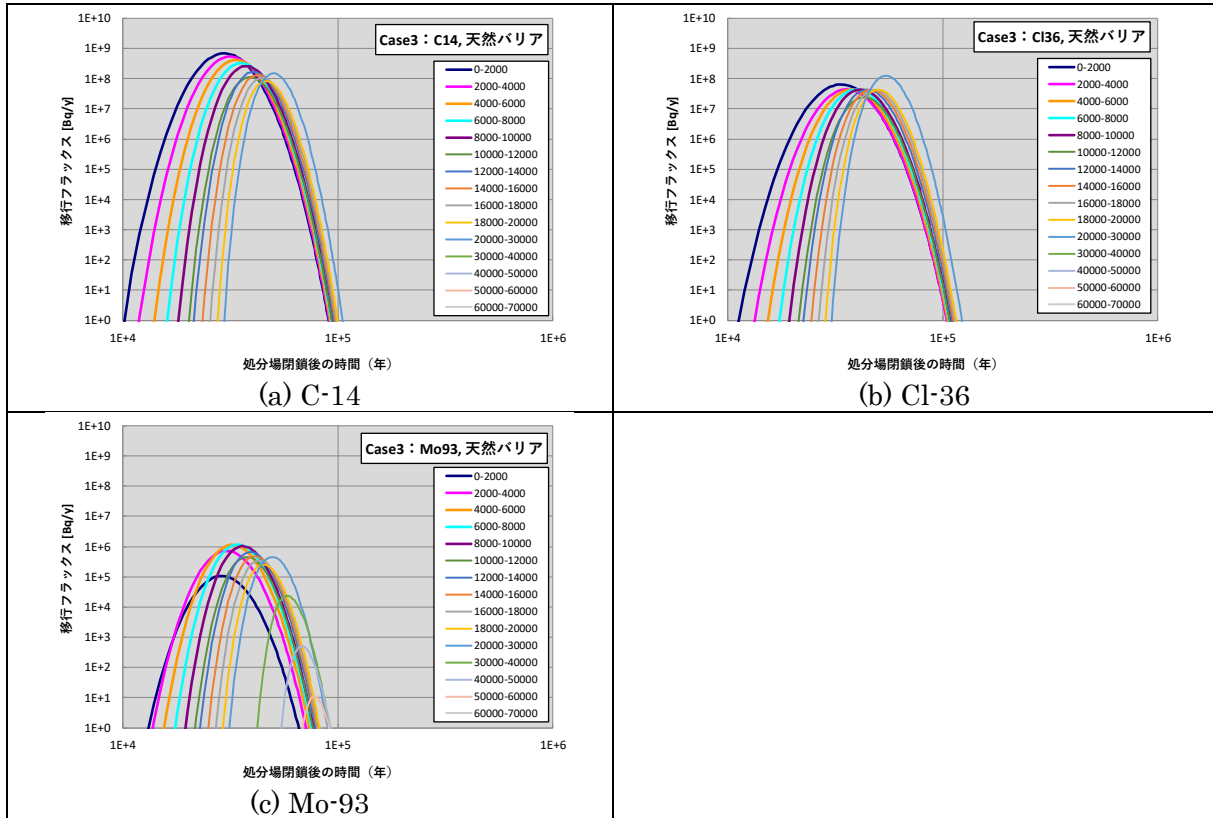


図 3.3-45 Case 3 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス

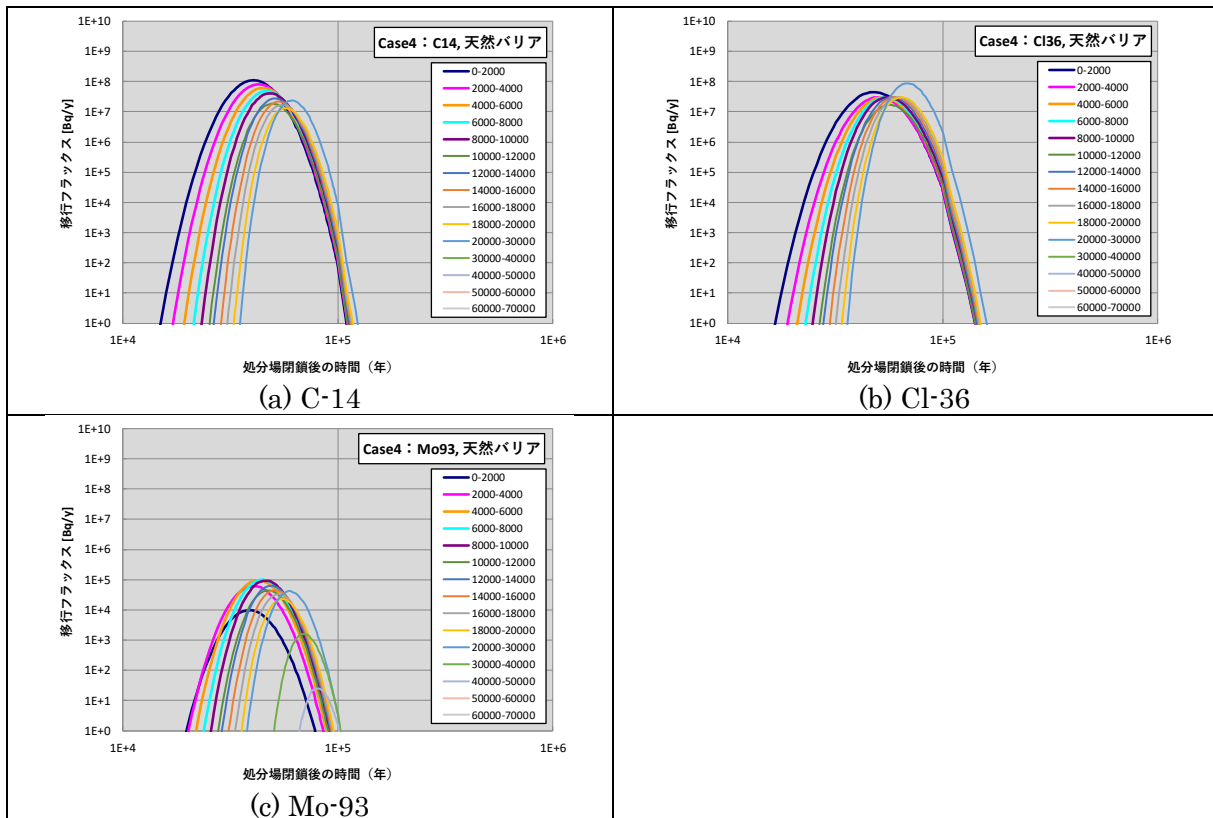


図 3.3-46 Case 4 の粒子放出時刻別の天然バリアからの移行フラックス

(c) 被ばく線量評価

代表的な被ばく経路である、河川水利用経路の被ばく線量の時間変化を図 3.3-47 に示す。Case 1 では C-14 が約 3.4 万年後に $0.96\mu\text{Sv/y}$ のピーク線量を示した。Cl-36 は約 4.7 万年後に $0.064\mu\text{Sv/y}$ のピーク線量となった。Ni-59 は $10^7\mu\text{Sv/y}$ 未満で有意な値とはならなかった。

地質係数を変動させたケースの Case 3 では C-14 のピーク線量は約 1.5% 増加した。また、Mo-93 は約 1% 増加し、Cl-36 は約 0.5% 減少した。

Case 2 では、C-14 は約 4.6 万年後に $0.14\mu\text{Sv/y}$ のピーク線量を示した。Cl-36 は約 6.2 万年後に $0.052\mu\text{Sv/y}$ 、Mo-93 は約 4.7 万年後に $9.2 \times 10^{-6}\mu\text{Sv/y}$ のピーク線量を示した。

地質係数を変動させたケースの Case 4 では C-14 のピーク線量は $0.17\mu\text{Sv/y}$ で約 17%、Cl-36 は約 6%、Mo-93 については約 32% 増加した。これは核種移行フラックスの上昇比率と一致するものである。

対象核種を 5 核種に限定し、地質係数を変動させたケースを取り上げた今回の解析ケースに限っては、基本ケースの位置①に廃棄物埋設地を設置した場合に最大の被ばく線量（約 $1\mu\text{Sv/y}$ ）を示す結果となった。なかでも C-14 の寄与が大きく、ピーク線量に対して 95% 以上の寄与を占めている。しかしながら、地質係数の不確かさによって本地点の周囲の堆積岩の地質係数が 300 から 200 へと 50% 低減し、侵食されやすい条件（Case 3）となっても、被ばく線量の変化はほとんどなく、核種移行の観点から比較的安定した地点といえる。

一方、同じ堆積岩である位置②は、被ばく線量の値は位置①よりも 1/7 程度と小さいが、近傍に地質係数の大きい付加体（基本ケース Case 2 で地質係数 500）があり、時間経過とともに地形勾配が大きくなる領域である。基本ケースでは移行経路、特に、間隙率の小さい基盤（松前層群）を通る経路が長くなることにより、核種移行を抑制する方向に働いたが、変動ケース Case 4 では、局所的に地形勾配が大きくなる領域はあるが、位置②からの移行経路に限れば、時間経過に依らず、移行距離、区間距離とも変動が少なく、10 万年オーダーで安定した領域とも考えられる。結果として Case 2 と比較すると移行距離が短くなることによって、被ばく線量としては大きくなった。

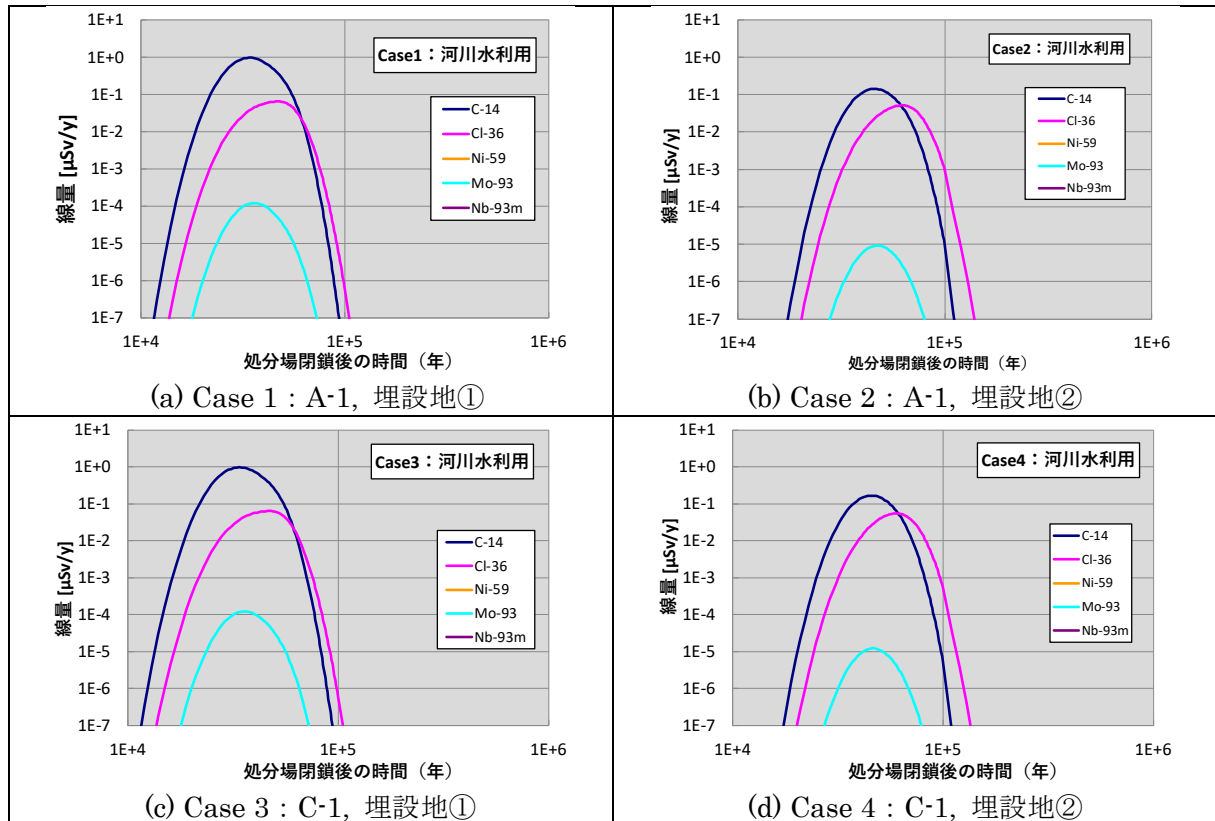


図 3.3-47 被ばく線量評価結果（河川水利用経路）

(4) まとめ

3.3.2 及び 3.3.3 で、地形変化によっても水理的影響を受けにくい領域を検討した結果に基づき 2 つの地点（位置①及び位置②）を選定し、地質係数の不確かさを考慮したケースについて、核種移行評価を実施して、地質係数の不確かさが核種移行へ与える影響について評価した結果、以下の知見が得られた。

- 位置①からの核種移行経路は地質係数の不確かさ（地質係数：600, 400, 200）を考慮しても基本ケース（地質係数：500, 400, 300）とほぼ変わらず、移行距離（約 1140m~約 1170m（木古内層（泥岩）→厚沢部層（砂岩）））及び移行時間（5710 年~5150 年）は 1%程度の範囲内に収まった。これらの結果に基づいて核種移行及び被ばく線量評価（河川水利用経路）を行ったところ、Case 1 及び Case 3 の C-14 によるピーク線量が $0.96\mu\text{Sv/y}$ となったが、ケース間の被ばく線量の違いは、移行距離及び移行時間の変動の幅 1%程度にとどまった。
- 位置②からの核種移行経路は、地質係数の不確かさを考慮すると基本ケースよりも移行距離（約 1210m~約 1370m（基盤（松前層群・泥岩）→木古内層（泥岩）））及び移行時間（3830 年~4580 年）はそれぞれ 5%程度減少した。さらに経路上の地質区分を整理すると、基本ケースが基盤（松前層群）を通る区間が 200m 程度増加して、木古内層を通る区間が約 100m 程度減少するのに対し、地質係数の不確かさを考慮したケースでは、基盤（松前層群）を通る区間は約 80m 程度しか増加せず、木古内層の通る区間は減少しなかった。これらの結果に基づいて、核種移行及び被ばく線量評価（河川水利用経路）を行ったところ、Case 2 では C-14 によるピーク線量は $0.14\mu\text{Sv/y}$ となり、Case 4 では C-14 で 17%、Cl-36 で 6%、Mo-93 で 33%増加した。位置①と移行距離は大きく変わらず、粒子追跡線解析の移行時間は位置②の方が短いにもかかわらず、位置②の基盤（松前層群）の間隙率 0.02 と位置①の木古内層の間隙率 0.05 の差によって、核種移行が異なる結果となった。
- 地下水流動解析から特定した水理学的影響の小さい領域において選定した複数の位置から移行経路の特性（経路、距離、移行時間）を評価した結果、10 万年スケールの地形変化の影響を受けにくい位置、あるいは受けやすい位置を評価できる見込みを確認することができた。

以上の結果から、地形変化による核種移行を評価した際の妥当性を評価するにあたっての留意点を以下に挙げる。

- 同じ岩種（地質係数が同じ岩）が広く分布し、周囲の勾配が大きい地点においては、地質係数が変動しても、10 万年スケールにおいて、核種移行経路は大きく変動せず、経路上の核種移行に大きな影響を与える可能性は小さく、廃棄物埋設地の位置の性能として、適切な候補の一つである。
- 異なる岩種（地質係数が異なる岩）が近傍に存在する場合、地質係数が変動すると将来の地形勾配が増加して、動水勾配が変化し、地下水流動が変化することによって、移行経路が時間経過とともに移動する。全体の移行距離が変わらなくとも、地質区分の割合が変化することによって、核種移行への影響が大きくなることも想定される。こうした地点に廃棄物埋設地が配置される場合には、将来の地形変化の見通しについて、地質の受食性とその不確かさの検討が十分になされているかを確認するとともに、それが地下水流動場、特に移行経路の時間変化に与える影響と被ばく線量への影響を地質の調査データとともに適切に評価されているかを確認する必要がある。
- すなわち、透水性が低く、間隙率も小さい岩盤中に廃棄物埋設地が設置できたとしても、その後の地形変化により現時点の地下水流動場が変化して、当初想定していた移行経路から外れて、経路や移行時間が短縮する可能性が不確かさを考慮しても小さいことを確認する必要がある。

3.4 ニアフィールド領域における地下水流動解析の検討

3.4.1 処分場スケールの領域範囲の解析的検討

(1) 背景・目的

空間的なスケールの異なる複数のモデルを用いた解析では、各モデルの解析結果に対し整合性が取られていることが重要である。坑道から生物圏までの核種移行は、処分場スケールとサイトスケールとの連続的な粒子追跡線解析に基づき行われると想定される。一方で人工バリアに対する変動ケースの解析は、人工バリアの再現がサイトスケールで難しい場合は、処分場スケールのみで行われると想定される。そのためサイトスケールと処分場スケールの接続の観点から、サイトスケールにおいて坑道内の透水性の変化が影響を与えない範囲を、処分場スケールとして設定することが必要と考えられる。このような考えに基づき、SR-PSU では処分場スケールの領域範囲を解析的に検討している。

そこで本項目では、3.2.4 で整理したニアフィールド領域の設定に関する検討方法の1つとして、処分場スケールの領域範囲の解析的検討を行った。以下に、SR-PSU における検討の概要、今回の解析条件・解析結果を示す。

(2) SR-PSU における処分場スケールの領域範囲の検討

SR-PSU では Repository scale の領域範囲を、処分場の水理特性の変化が Regional scale の水理モデルの流れに影響を与えない、という影響条件で選択している。また、1つの Repository scale のモデルにおける水理特性の変化は、他の Repository scale のモデルの流れの条件に影響を与えてはならない。領域範囲を決定するために、Regional scale において極端な2ケースの透水係数が処分場に設定された場合の解析が行われている：

- ・岩盤ボルトとトンネルが一樣に透水性の高い物質で埋め戻される場合
($K=1E-5$ m/s)
- ・岩盤ボルトとトンネルが一樣に透水性の低い物質で埋め戻される場合
($K=2E-12$ m/s)

これらの2ケースとリファレンスケース(透水係数:上の2ケースの間)に対して、DarcyToolsにより定常状態になるまで解析が行われ。この計算は2つの海水準位置のケースに対して行われている(図 3.4-1)。

圧力に対するリファレンスケースとの差は以下の式で計算されている。

$$P_{Difference} = Abs \left(\frac{P_{low/high permeability} - P_{reference case}}{P_{reference case}} \right) \cdot 100 \quad (3.4.1)$$

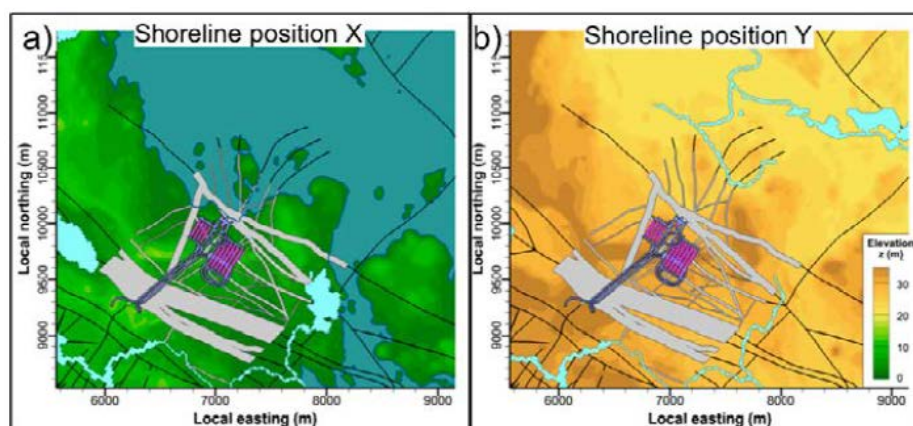


図 3.4-1 SR-PSU での処分場スケールの領域範囲の検討(汀線位置)⁽³⁾

解析の結果、透水性の低い物質で埋め戻される場合の方が影響が大きいことが示されている。両方のケースに対して、圧力の変化は処分場の領域から離れたところに拡がらない結果となっている。例えば、汀線位置 Y のケースで、5%の違いはベントナイトプラグから 10-15m 南側と 1BMA から 30m 東側まで見られている。サイロ周辺の変化も同様に、サイロの直径 (20m) より小さい範囲に限られている。このことから、SFR3 も SFR1 と同様に変化は小さいと推測している。以上の結果を踏まえて、SFR1 と SFR3 に対するモデル領域が設定されている。

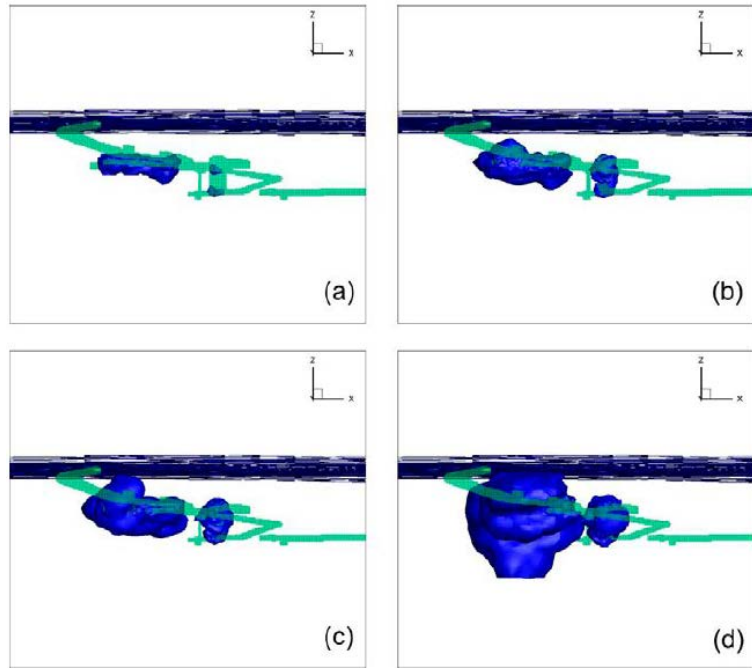


図 3.4-2 透水性が低いケースに対するリファレンスケースとの相対誤差 (汀線位置 : X)
 ((a) >10%, (b) >5%, (c) >3%, (d) >1%)

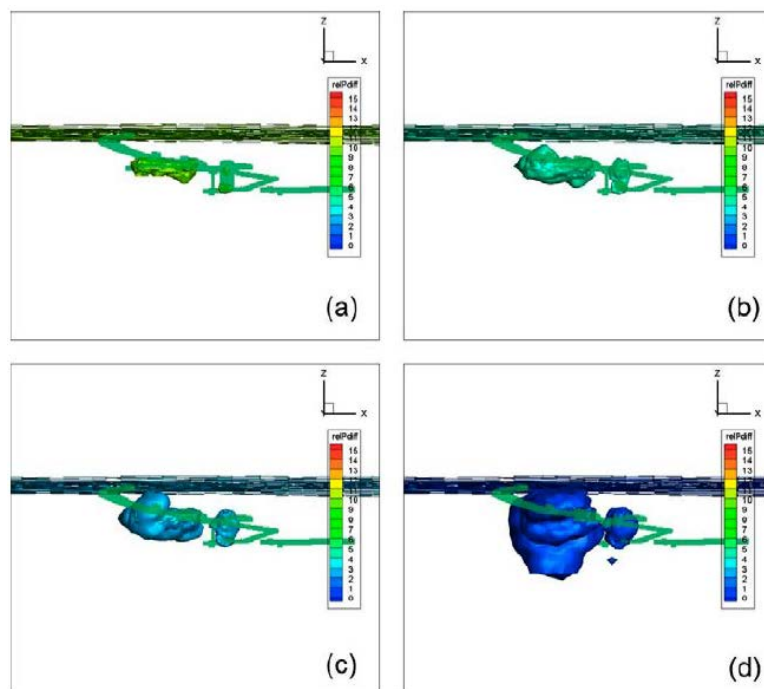


図 3.4-3 透水性が低いケースに対するリファレンスケースとの相対誤差 (汀線位置 : Y)
 ((a) >10%, (b) >5%, (c) >3%, (d) >1%)

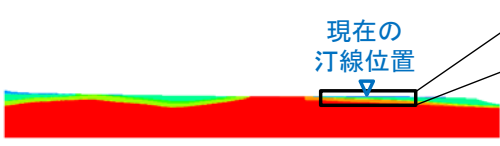
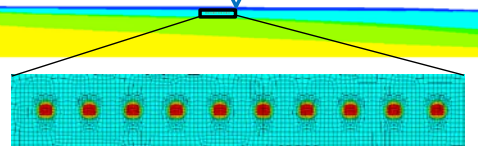
(3) 解析条件

SR-PSU では処分場深度が浅くバルト海が汽水であることから、密度を考慮せず浸透流解析のみを行っている。一方、わが国の中深度処分を対象とした場合、沿岸域では密度流を考慮する必要があると考えられる。

そこで本評価では 3.3 の対象地域に対し、広域スケール/サイトスケール/処分場スケールの 3 つのスケールを考慮し、SR-PSU と同様に処分場スケールの領域範囲を解析的に決定する方法について検討した。また今年度は予察的な評価として、2次元で解析を実施した。モデルに対する水理定数の設定は 3.3 と同様である。

解析条件の概要を表 3.4-1 に、条件設定の詳細を以下に示す。

表 3.4-1 解析条件 (広域スケール・サイトスケール)

	広域スケール	サイトスケール
モデル (表示: 地質分布 (0年))		
範囲	47.5 km×4 km	9.7 km×1 km (汀線周辺約 10 km)
処分場	再現なし [SR-Site : 再現なし]	坑道 (レファレンス : 1E-7m/s) [SR-PSU : 坑道]
メッシュ	50 m×10~50 m [SR-Site : (100m) ³]	坑道周辺 : (2 m) ² [SR-PSU : (2m) ³] 最大 : (10 m) ² [SR-PSU : (16m) ³]
状態	非定常 (洗い出し、現在~将来)	定常 (非定常に解析)
境界条件	側方 (左) : 不透水 側方 (右) : 圧力・塩分濃度固定 上面 : 降雨浸透境界、底面 : 不透水	側方 : 圧力・塩分濃度固定 上面 : 降雨浸透境界、底面 : 不透水 [SR-Site : 密度固定 (単純化) ¹]

- ・対象とした断面 :
河床縦断形 (奥行き方向の流れが小さい)
- ・海水準変動 : ケース 2
※ケース 2 に対する河床縦断形の評価結果では、12.5 万年後の汀線位置が現在より数 km 内陸に入り込む。今回処分場端が汀線に一致すると仮定したが、この設定では 12.5 万年後に処分場が海底下に位置することとなる。そのため、現在~最寒冷期までの海水準変動はケース 2 と同じ、最寒冷期後の海進は現汀線と同等の位置まで起こるとして、解析を行った。
- ・処分坑道の体系 :
電気事業連合会での設定⁽¹⁾および菅谷ほか(2010)⁽²⁾に基づき設定

¹ SR-Site の評価では、実際にはモデル化の違いにより広域スケールとサイトスケールの塩分濃度分布が異なる可能性があることが指摘されている。

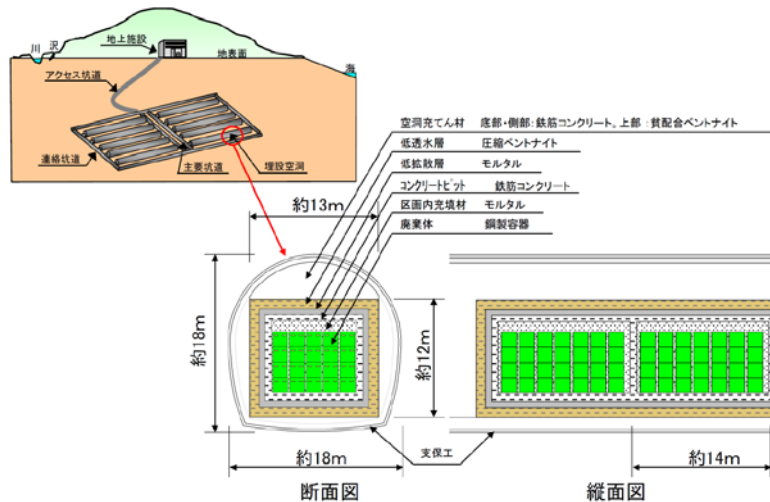


図 3.4-4 中深度処分における埋設施設の構造イメージ⁽¹⁾

- ・ 処分坑道の離隔距離：
第2次 TRU レポート⁽¹⁾において、力学的な安定性から処分坑道の直径（幅）の2.5～3倍と示されていることから、50m（～直径約18mの3倍）と設定
- ・ 処分坑道の本数：
平成29年度報告書⁽³⁾における中深度処分を対象とした廃棄体グループ毎に必要な定置領域の推定結果に基づき、各グループの処分坑道は独立（第2次 TRU レポート⁽¹⁾）、坑道長さを500mと仮定して、坑道本数を10本と算出

表 3.4-2 各廃棄体グループに必要な定置領域と坑道本数（坑道長さ：500m）

グループ	廃棄物発生源	容器形状	廃棄物の分類	廃棄体定置領域		必要な坑道本数 (500m)
				廃棄体個数 (-)	長さ (m)	
BPG_st	原子力発電所 (原子炉廃棄物)	1.6m□× 1.6m容器	放射化金属等 (ステンレス銅)	24306	1945.6	4
BPG_zr			放射化金属等 (ジルカロイ)	380	28.8	1
BPG_gr			放射化金属等 (黒鉛)	655	52.8	1
BPG_ot			汚染廃棄物（樹脂類、コンクリート、その他）	1461	118.4	1
BPG_no			汚染廃棄物 (樹脂処理廃液)	1437	115.2	1
CYC_st	再処理工場 ・MOX工場 (サイクル廃棄物)	1.6m□× 1.2m容器	放射化金属等 (ステンレス銅を仮定)	6527	419.2	1
CYC_ot			汚染廃棄物（樹脂類、コンクリート、その他）	7945	508.8	1
CYC_no			汚染廃棄物 (除光廃液)	239	16	0
総本数						10

- ・ 処分場位置：汀線から陸側500mに位置すると仮定
- ・ 処分場深度：深度120mと仮定
（～対象地域における12.5万年間の隆起量+確保すべき対地深度70m）
- ・ 坑道内の透水係数
レファレンスケース：1E-7 m/sと仮定（3.4.3 埋め戻し材の透水係数を参照）
透水性が低い/高いケース：2E-12/1E-5 m/s（SR-PSUと同じと仮定）

(4) 解析結果

密度流の影響を考慮するために、本項目では密度を考慮した全水頭に対して相対誤差を推定した。また、サイトスケールと処分場スケールで連続した粒子追跡線解析を行う必要があることから、移行経路に対する影響についても確認した。

● 密度を考慮した全水頭に対する相対誤差

密度を考慮した全水頭に対する相対誤差の評価結果を図 3.4-5 に示す。処分場周辺の濃度分布がほぼ一様である 11 万年後（淡水）では、坑道の透水性による影響は坑道周辺に限られる。一方 0 年・12.5 万年後においては、塩分濃度の影響により、影響範囲は坑道の周囲約 1km × 600m に拡大している。

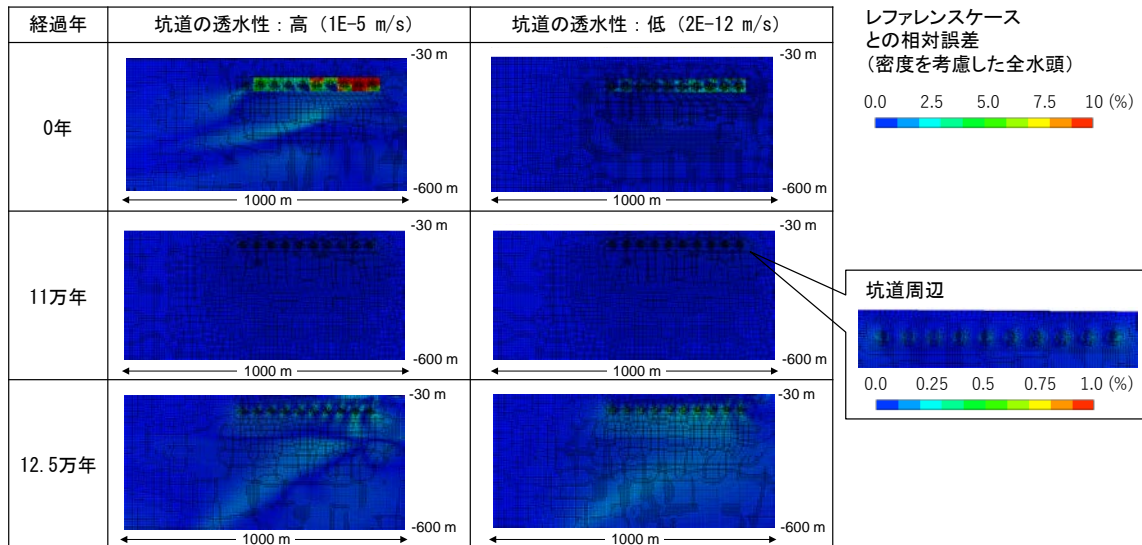


図 3.4-5 レファレンスケースとの相対誤差（密度を考慮した全水頭）

● 坑道からの移行経路への影響

坑道からの移行経路は、各処分坑道の上面中央を始点とした粒子追跡線解析により実施した。評価結果を図 3.4-6 に示す。坑道の透水性の違いによる移行経路への影響は、坑道の上部約 100m 程度で見られた。以上を踏まえ、坑道の透水性の違いによる水理学的影響の小さい範囲として、処分場スケールの領域範囲を坑道の周囲 1km × 600m と設定した。

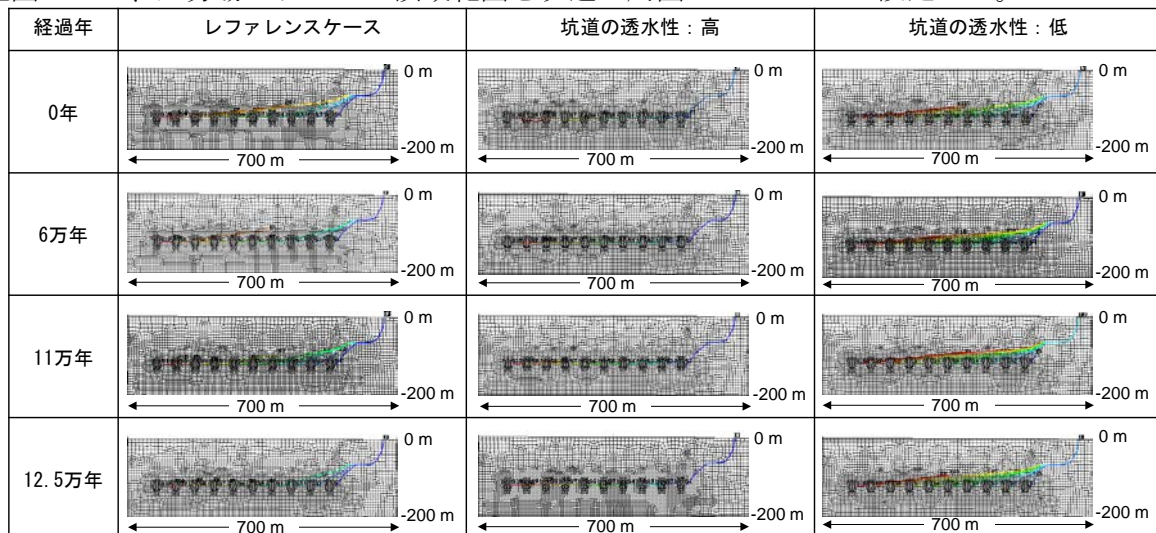


図 3.4-6 坑道からの移行経路への影響

3.4.2 EDZ の設定による処分場からの移行への影響評価

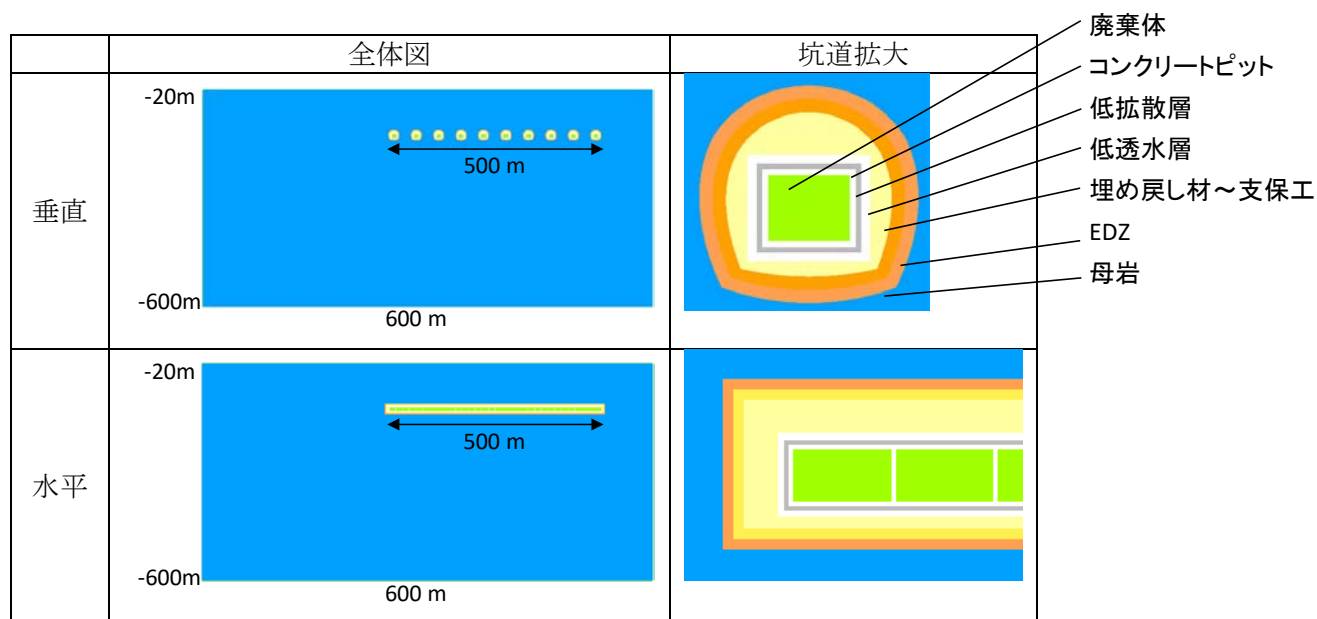
(1) 背景・目的

3.3.4 の広域スケールでの核種移行解析で評価したように、処分場の空間的な広がりの中で移行経路が異なる傾向を示す場合がある。したがって、処分場エリア内において、どのような移行経路で廃棄体から漏出した核種が人工バリア、支保工及び掘削影響領域 (EDZ) を通過し、天然バリア領域のニアフィールドに到達して、広域の地下水流動に流れ込むかによって、支配的な移行経路が生じることも想定される。すなわち、処分場全体から均等に核種が漏出するのではなく、処分坑道及びその周辺の物性等から核種が選択的に移行する経路が生じて、天然バリアのニアフィールドに漏出して、支配的な移行経路となるものである。

本項目では EDZ の透水性の低下や厚さによる移行経路への影響を評価するために、EDZ の厚さ・透水係数を変化させた感度解析により、坑道からの移行への影響を 2 次元で予察的に検討した。

(2) 解析条件

3.4.1 で選定した処分場スケールを対象に、坑道の配置が地下水の流れに垂直または水平な場合の 2 ケースに対し、評価を実施した。モデルの全体図・人工バリアの設定を図 3.4-7 に示す。

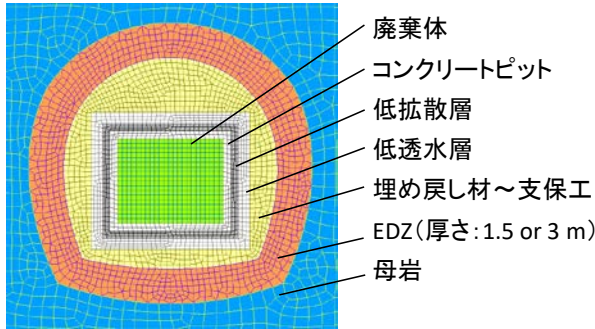


*母岩に対しては地質を一括で表示しているが、実際には地質分布を考慮している

図 3.4-7 処分場スケール (解析モデル)

坑道が流れに垂直な場合の坑道のメッシュ、および、人工バリアに対する水理定数の設定値を図 3.4-8 に示す。透水係数および間隙率は、平成 29 年度報告書で類似の解析において設定した人工バリアの初期物性値 (表 3.4-3) に基づき設定した (初期値の根拠: Appendix II-D に記載)。なお、廃棄体に対する値は鋼板の値で代表させ、透水係数はコンクリートピットと同じ値を仮定した。分散長は広域・サイトスケール (3.4.1) と同じ値を設定し、分子拡散係数は一律に自由水中の値 $1E-9 \text{ m}^2/\text{s}$ を与えた。

EDZ については、幌延深地層研究所における EDZ の評価結果⁽⁴⁾ (深度 250m) を参考に、透水係数については坑道周辺の母岩 ($1E-7 \text{ m/s}$) に対し 5, 10, 20 倍、幅については 0 (EDZ なし), 1.5, 3.0m と設定し、感度解析を行った。間隙率は同文献に基づき 0.5 と設定した。



部材	透水係数 (m/s)	間隙率 (-)
廃棄体・鋼板	1.000E-07	0.273
コンクリートピット	1.000E-07	0.273
低拡散層	1.000E-07	0.050
低透水層	6.380E-13	0.385
埋め戻し材～支保工	1.000E-07	0.273

図 3.4-8 処分場スケール (メッシュ分割および水理定数)

表 3.4-3 人工バリアに対する水理定数の設定値

		鋼板	コンクリートピット(鉄筋入りセメントペースト硬化体)	低拡散層(セメントペースト硬化体)	低透水層(ベントナイト)	埋戻し材(鉄筋入りセメントペースト硬化体)
		水セメント比 (kg/kg)	W/C	-	0.65	0.4
鉱物量(wt%)	Ca(OH) ₂		13.78	15.33		13.78
	C-S-H (1.8)		54.19	60.30		54.19
	Monosulfate (AFm)		8.91	9.91		8.91
	Hydrogarnet		11.19	12.45		11.19
	Brucite		1.60	1.78		1.60
	K ₂ O		0.14	0.16		0.14
	Na ₂ O		0.07	0.08		0.07
	Montmorillonite				49.0	
	Quartz				38.0	
	Analcime				3.0	
	Calcite				2.5	
	Pyrite				0.6	
	SiO ₂ (砂)					
	Fe(c)	100	10.12			10.12
other minerals				6.9		
total	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	
鉱物量 (mol/L-water)	Ca(OH) ₂		1.062E+01	1.500E+02		1.062E+01
	C-S-H (1.8)		2.450E+01	3.461E+02		2.450E+01
	Monosulfate (AFm)		8.175E-01	1.155E+01		8.175E-01
	Hydrogarnet		1.690E+00	2.387E+01		1.690E+00
	Brucite		1.567E+00	2.214E+01		1.567E+00
	K ₂ O		8.723E-02	1.232E+00		8.723E-02
	Na ₂ O		6.629E-02	9.363E-01		6.629E-02
	Montmorillonite				9.222E-01	
	Quartz				2.625E+01	
	Analcime				5.657E-01	
	Calcite				1.037E+00	
	Pyrite				2.076E-01	
	SiO ₂ (砂)					
	Fe(c)	3.75E+02	1.035E+01			1.035E+01
other minerals (Vc_rock)				6.1		
間隙率		0.273	-	-	0.385	-
間隙率(毛細管間隙)		-	0.273	0.05	-	0.273
間隙率(物質移動毛細管間隙)		-	0.100	0.005	-	0.100
間隙率(貯留毛細管間隙)		-	0.172	0.045	-	0.172
有効拡散係数 (m ² /s)		5.370E-11	5.370E-11	2.685E-12	3.685E-11	5.370E-11
透水係数(m/s)		-	1.000E-07	1.000E-07	6.380E-13	1.000E-07

(3) 解析結果

- 坑道が流れに対し垂直な場合

- ・ 移行経路への影響

坑道表面からの移行経路について、EDZがない場合の結果を図 3.4-9 に、EDZ を考慮した場合の結果を図 3.4-10 に示す。評価の結果、坑道が流れに対し垂直に配置されている場合、EDZ の有無による移行経路の変化は小さいことが確認された。

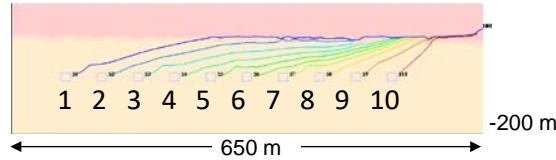


図 3.4-9 坑道表面からの移行経路 (EDZ なし) (垂直)

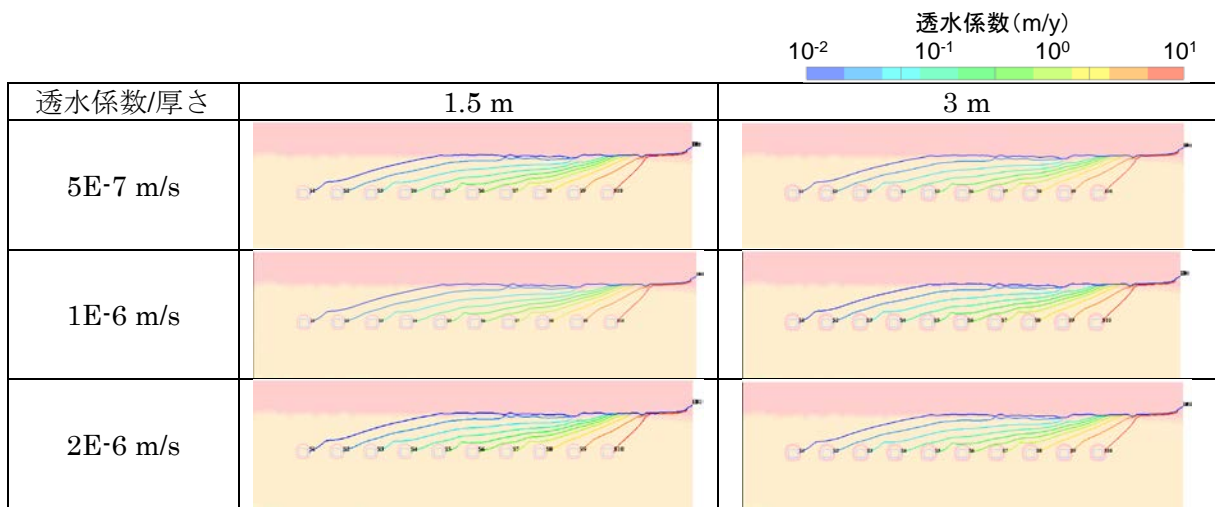


図 3.4-10 坑道表面からの移行経路 (EDZ あり) (垂直)

- ・ 移行時間・平均流速への影響

上で示した各移行経路に対し、移行時間・平均流速をまとめた結果を以下に示す (始点番号: 図 3.4-9 に対応)。評価の結果、汀線から離れた位置 (No. 1~3) で EDZ の設定による変化が大きく見られた。EDZ の設定が厳しい場合 (透水係数 2E-6 m/s, 厚さ 1.5 m)、移行時間は EDZ がない場合に対し最大で約 7 割まで減少、平均流速は最大で約 1.3 倍に増加した。

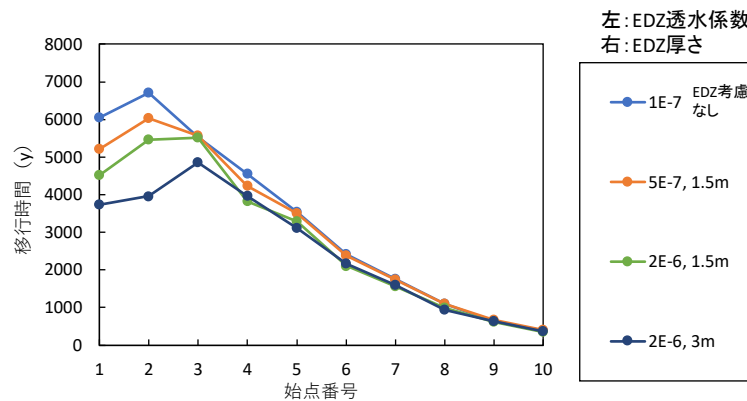


図 3.4-11 坑道表面からの移行時間 (垂直)

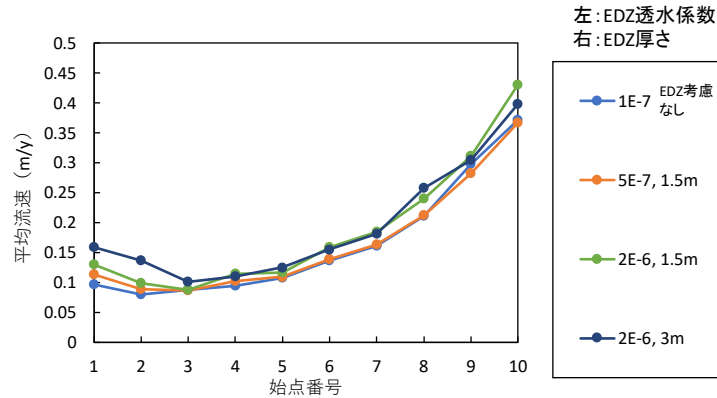


図 3.4-12 坑道表面からの平均流速（垂直）

● 坑道が流れに対し平行な場合

・ 移行経路への影響

坑道表面からの移行経路について、EDZ がない場合の結果を図 3.4-13 に、EDZ を考慮した場合の結果を図 3.4-14 に示す。評価の結果、坑道が流れに対し平行に配置されている場合、EDZ の透水性・厚さの増加に伴い、EDZ に沿って移行する傾向が確認された。

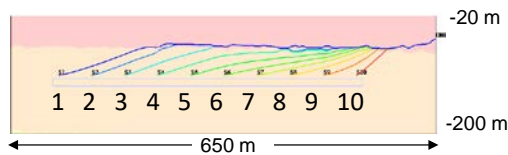


図 3.4-13 坑道表面からの移行経路（EDZ なし）（平行）

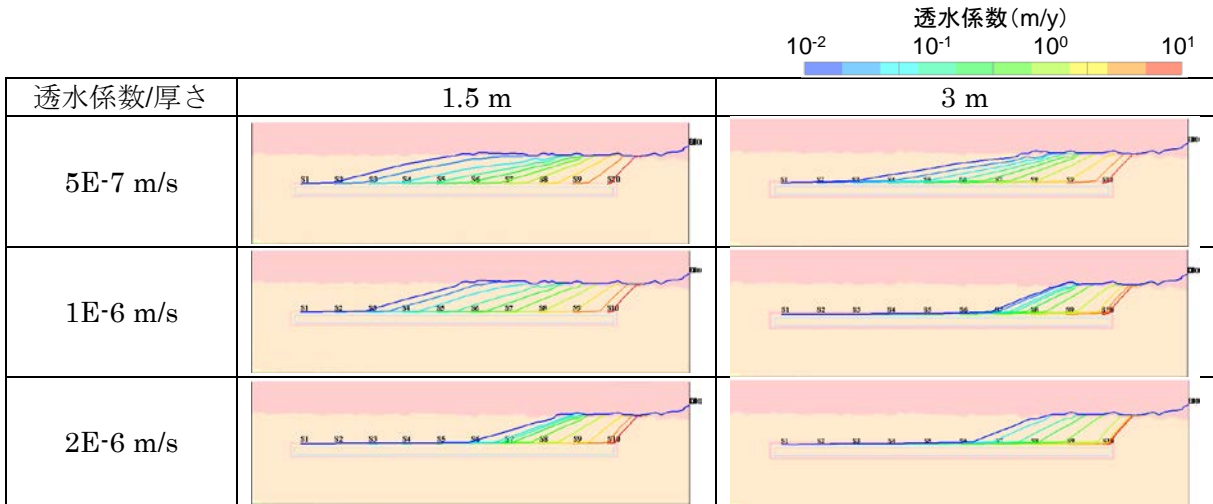


図 3.4-14 坑道表面からの移行経路（EDZ あり）（平行）

・ 移行時間・平均流速への影響

上で示した各移行経路に対し、移行時間・平均流速をまとめた結果を以下に示す（始点番号：図 3.4-13 に対応）。評価の結果、汀線から離れた位置（No. 1～3）で EDZ の設定による変化が大きく見られた。EDZ の設定が厳しい場合（透水係数 2E-6 m/s、厚さ 1.5 m）、移行時間は EDZ がない場合に対し最大で約 4 割まで減少、平均流速は最大で約 2 倍に増加した。

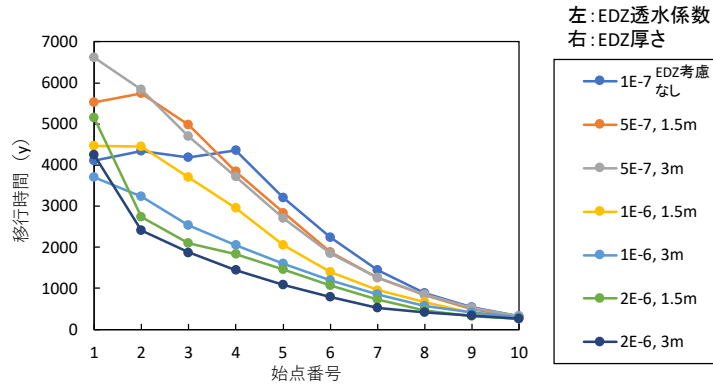


図 3.4-15 坑道表面からの移行時間（平行）

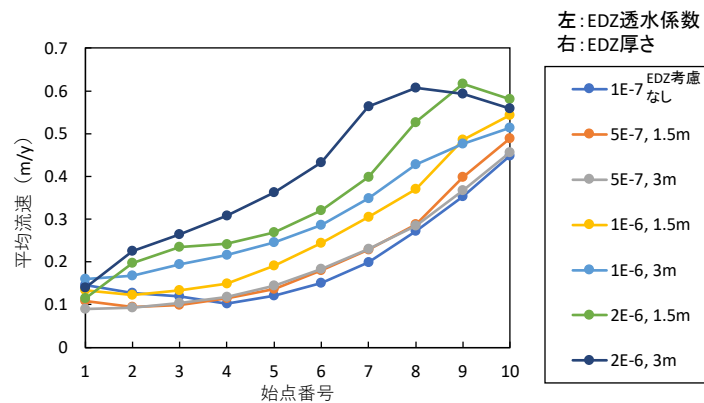


図 3.4-16 坑道表面からの平均流速（平行）

3.4.3 まとめ

本項目では国内におけるニアフィールドの領域範囲に資するために、まず地下水流動解析における処分場スケールの領域範囲の設定方法を、異なるスケールの地下水流動の接続の観点から検討した。また、処分場スケールにおける EDZ の条件設定に対する感度解析により、核種移行経路に与える影響を地下水流動の観点から検討した。検討結果から、ニアフィールド領域の評価に係る留意点を以下のように整理した。

- 処分場スケールの領域範囲は、空間的に異なるスケールのモデルを接続する観点から、適切な範囲を解析的に決定する必要がある。坑道の透水性の違いによる塩分濃度分布の変化を考慮する場合、その影響は坑道周辺の塩分濃度分布が様でない場合に大きく現れることから、海水準変動の影響を考慮した上で領域範囲を検討する必要がある。
- 掘削による岩盤の物理的な影響により透水性が大きくなることにより、選択的に EDZ 領域に通水される。EDZ の透水性の上昇の程度及び幅を坑道内部からの調査により把握し、核種移行時間への影響が小さいことを適切に評価されているかを確認する必要がある。核種移行時間を十分に確保できない場合には、EDZ による水みちを断つ方策が実現可能かを含めて確認する必要がある。

3.5 上北地域を対象とした評価に向けた調査

3.5.1 上北地域を対象としたデータ調査

(1) 背景・目的

平成 29 年度より地形変化評価の評価対象としてきた地域では、地下水流動に関して得られているデータがない。地形変化を反映した地下水流動解析に対する信頼性を高めるためには、データを豊富に得られる地域で検証を行うのが望ましい。そこで本項目では、まず長期的な地形変化・地下水流動・核種移行の各評価の入力・検証に必要なデータを整理した。そして、すでに十分な調査が行われデータ情報が豊富と考えられる上北地域において、上記で整理したデータの一部を収集・整理した。

(2) 評価に必要なデータの選定

地形変化・地下水流動・核種移行の各評価の入力・結果確認に適用できるデータを、表 3.5-1、表 3.5-2 及び表 3.5-3 のように整理した。地形変化評価に必要なデータは、日本原子力研究開発機構と JX 日鉱日石探開株式会社（現 JX 金属探開株式会社）が特許権者の特許（特許第 5422833 号）による方法を用いたコード（JAEAsmtp）により、将来約十万年の期間を対象とした評価を行うことを前提に整理した。地下水流動解析に必要なデータは、日本原子力研究開発機構において開発中の 3 次元地下水流動・物質移行解析コード 3D-SEEP により、多孔質媒体近似により広域地下水流動解析を行うことを前提に整理した。核種移行解析に必要なデータは、堆積岩を対象とした地下水流動解析結果に基づき、人工バリアからの放出位置から粒子追跡線解析を行い、核種の移行経路を設定して、移行経路に沿った 1 次元の核種移行解析を GSRW-PSA によって評価することを前提に整理した。

以上で整理したデータのうち、地質分布（地質係数）・地殻変動速度・平均侵食速度・地質断面図・水理定数（透水係数・間隙率・不飽和浸透特性）に対して、上北地域を対象としたデータ収集・推定を行った。なお平均侵食速度の推定には、海成段丘で構成される上北地域の段丘面の開析による侵食、段丘崖の側方侵食についての分析結果が含まれている。

表 3.5-1 評価に必要なデータの選定結果（地形変化評価）

項目	入力	結果確認	設定方法（従来の方法、既往の評価での方法）
マップデータ			
標高DEMデータ	○		陸域：国土地理院 海域：海底地形デジタルデータ
2次元地質図	○		産総研シームレス地質図
地質係数マップデータ	○		1. 2次元地質図を大まかな地質単元に分類 2. 地質係数へ変換（P波速度、岩石の一軸圧縮強度、地盤のN値等から推定）
地殻変動速度マップデータ	○		海岸段丘・河成段丘から推定した隆起速度を領域内で内外挿する
沖積層厚マップデータ	○		現在の河口での沖積層厚さ（埋没谷深度）を現在の海底地形を用いて外挿する
古地形	○		段丘面、地形発達史に基づく推定
拘束条件			
河床縦断形（現在、最寒冷期）		○	最寒冷期の河床縦断形（平衡河川の場合）： 1. 河成段丘を判読 2. 判読した河成段丘を、期間隆起量を補正し河床縦断形の図にプロット 3. 河床が形成された当時の海水準を最寒冷期の海水準（-120m）相当と仮定したときの河口位置を2と結ぶ
埋没谷深度		○	・ボーリングデータによる沖積層厚さの実測値 （ない場合は周囲の河川のデータから推定）
平均侵食速度		○	・段丘面・開析谷侵食速度の計算 ・ダム堆砂量データと高度分散量の関係からの推定
谷底侵食低地の幅		○	領域内に含まれる河川に対し複数のポイントにおいて沖積幅を計測
パラメータ			
時間設定	シミュレーションのステップ年	○	10年と仮定（ステップ毎に流路を見直し、洪水は数十年間隔で起こると想定）
侵食・運搬	斜面領域／河川領域の境界	○	領域面積の平方根
	斜面係数	○	
	河川係数（SPI法、流域面積に比例）	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	河川係数（SPI法、勾配に比例）	○	
	斜面の土砂平均移動距離	○	1つ下流のメッシュに堆積させる
	河川域上流端での運搬距離	○	1つ下流のメッシュに堆積させる
	礫径係数	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	河口に到達した土砂の海底に堆積する割合	○	全量堆積
気候変動	気候係数	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	海水準変動	○	将来：過去の海水準変動の外挿、GIAによる海水準変動の予測
側刻・蛇行	側刻強度	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	蛇行が始まる流下長	○	対象地域において側刻が現れる流域面積の平方根
	蛇行が始まる勾配	○	
	蛇行幅の算出係数	○	対象地域における計測結果より設定
	蛇行幅の定数項	○	
	側刻振幅係数	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
海域での堆積	蛇行時の確率	○	洪水が起こる間隔と合わせて考慮
	海に到達した土砂の堆積する割合	○	全量堆積
	安息角（泥）	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	水深20m以浅の安息角（砂）	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	河口での砂泥比（=砂／（砂＋泥））	○	拘束条件を満たすように地形変化評価コードを用いて推定
	堆積物の空隙率 堆積時に体積が増加する	○	堆積物の空隙は考慮しない
	1ステップで土砂が移動できる最大回数	○	土砂が移動し終わるのに十分な回数を設定

表 3.5-2 評価に必要なデータの選定結果（地下水流動解析）

項目	入力	結果確認	設定方法（従来の方法、既往の評価での方法）
マップデータ			
地質断面図	○		ボーリングデータ、音波探査等に基づく推定
3次元地質分布図	○		複数の地質断面図を内外挿して作成
拘束条件			
地下水位		○	
塩分濃度	○	○	
化石塩水の分布に関する情報	○		水素・酸素安定同位体比等から推定
パラメータ			
透水係数	○		・室内試験に基づく測定値 ・既存の測定データから類似する地層の値を設定 ・異方性・不均質性・亀裂に関する情報の考慮
間隙率	○		
貯留係数	○		
不飽和低吸関数	○		
降雨量	○		実測データに基づく推定

表 3.5-3 評価に必要なデータの選定結果（核種移行解析）

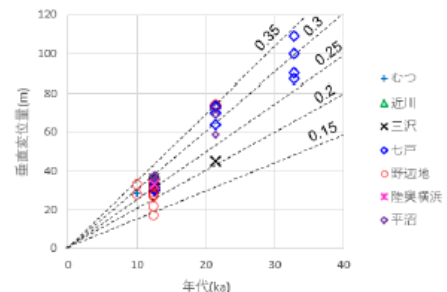
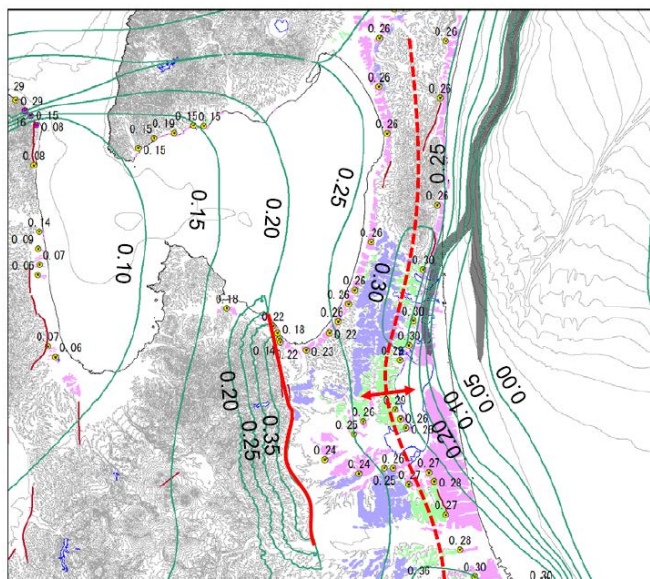
項目	入力	結果確認	設定方法（従来の方法、既往の評価での方法）
パラメータ			
移行距離	○		地下水流動解析結果に基づき、粒子追跡線解析によって移行経路上の地質・水質区分別の移行距離（人工バリアから放出時刻別）を算出。
平均流速（実流速）	○		地下水流動解析結果に基づき、粒子追跡線解析によって移行経路上の地質・水質区分別の平均流速（人工バリアから放出時刻別）を算出。
収着分配係数	○		移行経路上の地質・水質区分別の収着分配係数（Kd）を元素別に評価。元素の種類によっては地質中の鉱物割合に応じたKdを算出。実サイトに対して評価する場合は、各地質の試料を地下環境の状態のまま採取して、水質に応じたKdを実験によって測定・評価する必要がある。
間隙率	○		核種移行解析に用いるダルシー流速を上記平均実流速から計算するために必要な間隙率。移行経路上の地質区分に応じた間隙率を設定。地下水流動解析の入力に使用した値と整合をとる。

(3) 上北地域における調査結果

調査結果の一例を以下に示す。なお全調査結果は Appendix II-E に記載している。

● 隆起速度

対象地域における隆起速度マップを、海成段丘アトラス⁽¹⁾を基に作成した。領域内には、大陸棚外縁断層と野辺地断層の2つが含まれる。太平洋側では、大陸棚外縁断層以東で隆起速度が0となるような設定とした。野辺地断層については、高位段丘堆積物の基底の変位量が約70m以上であることから、高位段丘面の年代を約44~46万年前、撓曲の活動が約8万年前までと仮定し、過去の平均変位速度を0.18~0.19 mm/yとした。



上北周辺は0.15~0.35mm/y
小川原湖周辺は0.25~0.35mm/y

日本の海成段丘アトラス(2001)

図 3.5-1 上北地域における隆起速度の推定

● 侵食速度

現在の地形に対する DEM データを用いて、MIS5e~MIS9 に相当する段丘面の侵食速度を測定した。また地形段丘面の高度分散量を算出し、藤原ほか (1999) ⁽²⁾の侵食速度推定式から侵食速度を求め、測定値と比較した。この結果、段丘面の侵食速度は藤原ほか (1999) ⁽²⁾の推定値 (MIS9 を除く) の 3.7 倍程度大きい。また、上北北部の広い範囲で MIS9 を含めて藤原ほか (1999) ⁽²⁾から侵食速度を推定すると測定値は 3.6 倍大きく、両者はほぼ一致した。

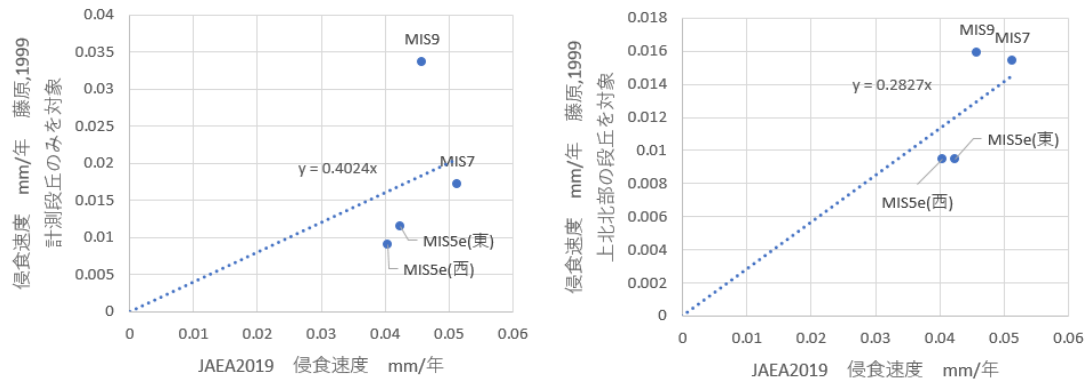


図 3.5-2 計測した平均侵食速度と藤原ほか (1999) (2)による推定値の比較

● 地質係数

対象地域の物性を下図に示す 8 単元に集約した。

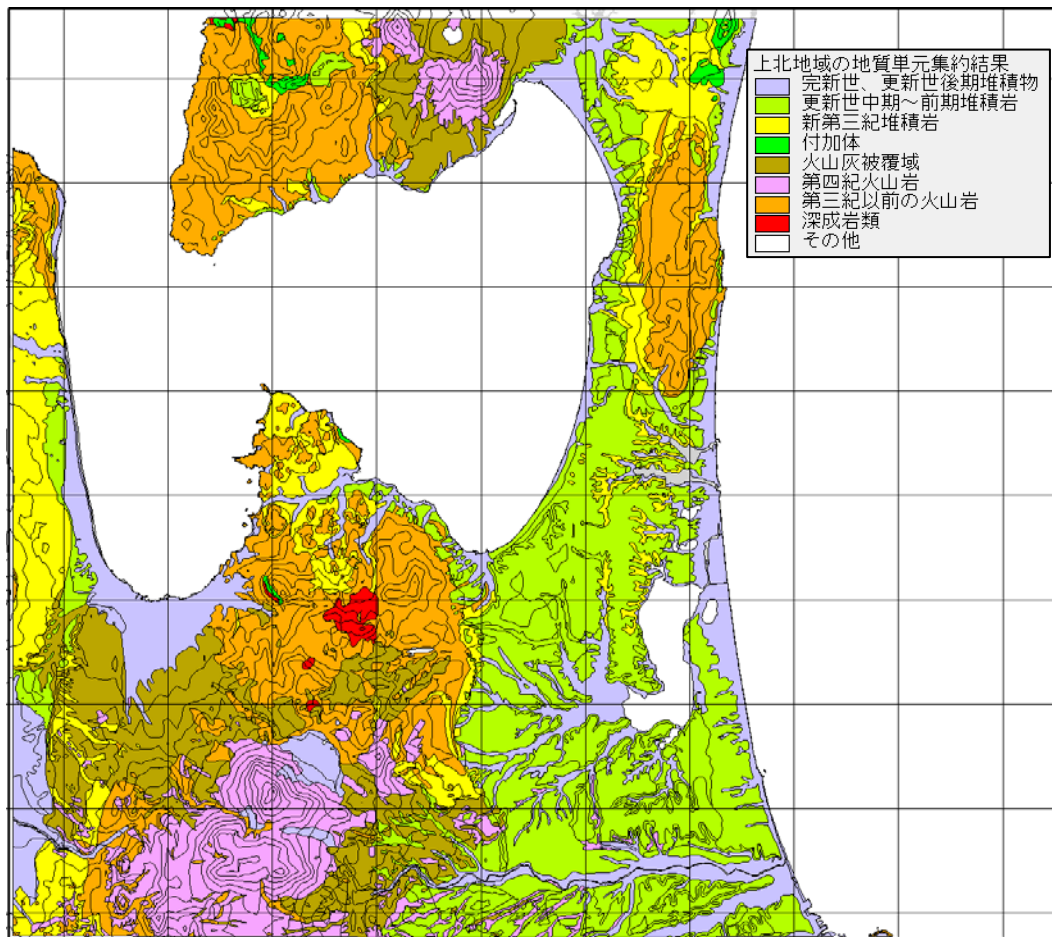


図 3.5-3 集約後の地質図 メッシュ間隔 10km

対象地域では中新世堆積岩の鷹架層について、一軸圧縮強度および N 値から地質係数 250 程度が推定される。

古第三紀以前および付加体はほぼ分布しておらず、付加体の平均傾斜は新第三紀堆積岩とほぼ等しいがチャートからなることから、新第三紀堆積岩類よりやや硬い地質係数 400 程度と推定される。

深成岩類は第三紀以前の火山岩類より平均傾斜が大きいことから、地質係数 500～1000 程

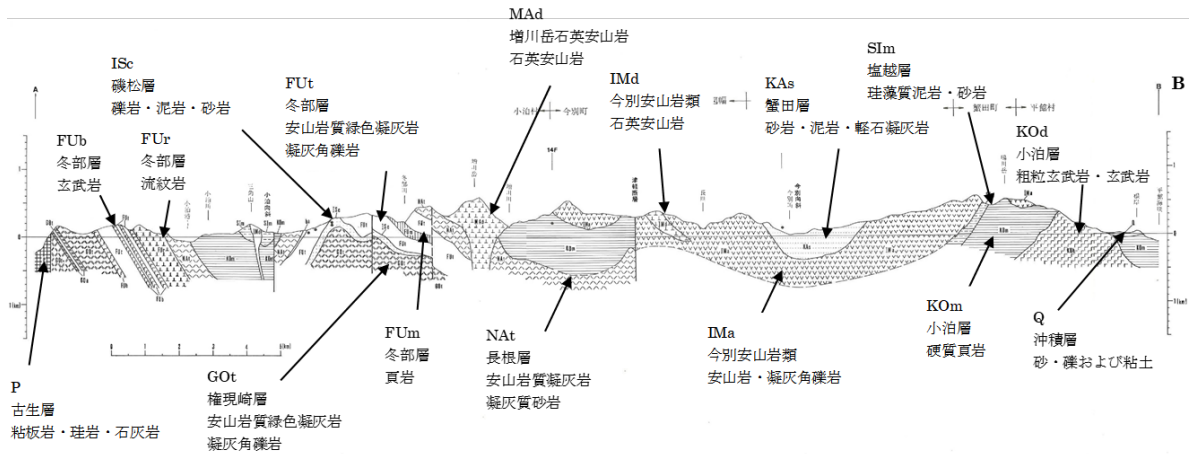


図 3.5-5 新生代東北本州弧地質資料集 No.8 (蟹田) (3)

● 水理定数

・ 透水係数

対象地域は完新世～更新世後期堆積物、更新世前期～中期堆積岩、新第三紀堆積岩類、付加体、第四紀火山噴出物、第四紀火山岩類、第三紀火山岩類、および深成岩の 8 単元に分けられる。表 3.5-5 に検討結果を示した。

表 3.5-5 対象地域の透水係数の検討結果

	完新世、更新世後期堆積物	更新世中期～前期堆積岩	新第三紀堆積岩	付加体	第四紀火山噴出物	新第三紀火山岩	第四紀火山岩	花崗岩
①梅田(1996) ⁽⁴⁾ の抜粋	2×10^{-6}	2×10^{-5}	4×10^{-5}	3×10^{-6}	9×10^{-6}	9×10^{-7}	7×10^{-6}	---
②その他文献	---	$2-7 \times 10^{-5}$	1×10^{-7}	---	---	---	---	---
③梅田(1996) ⁽⁴⁾ 平均	6×10^{-5}	1×10^{-7}	9×10^{-7}	2×10^{-6}	1×10^{-6}	2×10^{-6}	1×10^{-6}	2×10^{-6}
④地圏テクノロジー(2015) ⁽⁵⁾	1×10^{-4}	2×10^{-7}	2×10^{-7}	2×10^{-8}	1×10^{-5}	1×10^{-7}	1×10^{-7}	1×10^{-8}
⑤熊本ほか(2007) ⁽⁶⁾	---	---	$1 \times 10^{-5} \sim 7$	---	---	---	---	$1 \times 10^{-6 \sim 8}$
⑥今井ほか(2009) ⁽⁷⁾	2×10^{-7}	1×10^{-7}	1×10^{-7}	---	---	---	---	---
検討結果	1×10^{-5}	1×10^{-5}	1×10^{-7}	1×10^{-7}	5×10^{-6}	1×10^{-7}	1×10^{-7}	1×10^{-7}

完新世～更新世の堆積物は①と④の中間とし、更新世前期～中期の堆積岩は野辺地層が砂を主とする堆積岩であり、②の文献値を参考として決定した。

新第三紀堆積岩は②の文献値を参考とした。付加体は③と④の中間を与えた。

火山噴出物は①、③、④の中間とした。火山岩類は④を参考とした。花崗岩は③、④、⑤の中間的な値を与えた。

・ 間隙率

対象地域で間隙率(ないし間隙比)が測定された文献としては、川越ほか(2008)⁽⁸⁾がある。川越ほか(2008)⁽⁸⁾では段丘を構成する野辺地層とこれを被う高館面構成層の空隙比として報告されており、これを空隙率に換算した。これら間隙率は46～56%の範囲に収まり、それぞれの平均値は50%前後とほぼ一定の値を示す。したがって、対象地域の第四紀層以降の堆積

岩については間隙率を 50%として良いと推定される。新第三紀堆積岩についてのデータはないが、第四紀層以降の堆積岩の間隙率を参考に 50%と設定した。またこれらには凝灰岩の間隙率が記載されていないが、中村ほか (2010) ⁽⁹⁾によれば一般的な凝灰岩の間隙率は 20～53% (平均 33%) とされる。さらに、小島・中尾 (1995) ⁽¹⁰⁾による岩石の間隙率では、火成岩類や変成岩類では安山岩や片岩でやや間隙率が大きい他は数%程度となっており、間隙率の変動幅は小さい。

以上を踏まえ、下表のように間隙率を設定した。

表 3.5-6 間隙率の検討結果

	完新世、 更新世後期 堆積物	更新世 中期～前 期堆積岩	新第三紀 堆積岩	付加体	第四紀 火山 噴出物	新第三紀 火山岩	第四紀 火山岩	花崗岩
間隙率 (%)	50	50	50	3	33	7	7	5
引用元	A	A	A	B	C	B	B	B

A: 川越ほか (2008) ⁽⁸⁾, B: 小島・中尾 (1995) ⁽¹⁰⁾ C: 中村ほか (2010) ⁽⁹⁾

・比貯留係数

比貯留係数は水頭(h)が 1 増加した場合に単位体積に取り込まれる、または排出される水の体積を表し、不圧地下水のときは 0 に等しくなり、通常 Ss で表される。地盤工学会 (2017) ⁽¹¹⁾の比貯留係数の解説によれば、一般には堆積圧縮率から比貯留係数を概算値として推定している場合が多いとしている。

対象地域では主として中新世～鮮新世の堆積岩が卓越し、熊本ほか (2007) ⁽⁶⁾の堆積岩類と同時代であることからこれを参考として比貯留係数を設定した。

表 3.5-7 比貯留係数の検討結果

	完新世、 更新世後 期堆積物	更新世 中期～前 期堆積岩	新第三紀 堆積岩	付加体	第四紀 火山 噴出物	新第三紀 火山岩	第四紀 火山岩	花崗岩
比貯留 係数	1.00E-05	1.00E-05	1.00E-06	1.00E-06	1.00E-05	1.00E-06	1.00E-06	5.00E-07
引用元	幌延表層	土岐瀬戸 層群	土岐瑞浪 層群	土岐瑞浪 層群	土岐瀬戸 層群	土岐瑞浪 層群	土岐瑞浪 層群	土岐 花崗岩類

(4) まとめ

本項目では、地形変化、地下水流動、核種移行の各評価の入力・結果確認に適用できるデータの整理結果を示すとともに、データ情報が豊富と考えられる上北地域において公開文献等に基づき、今後の評価に必要なデータの一部として、地形変化評価に必要なデータ (隆起速度・侵食速度・地質係数) および地下水流動解析に必要なデータ (地質断面・水理定数) を収集・推定した。

3.5.2 浅海域での波蝕・海食崖の後退に関する検討

(1) 背景・目的

隆起・侵食及び海水準変動を考慮し、現実に即した地形変化とそれに応じた地下水流動の適切な評価に対する技術的知見の蓄積を目的として、沿岸陸域を対象とした地形の時間変化に応じた地下水流動の変化を評価可能とする三次元の地形変化と地下水流動を組み合わせた評価手法の整備を進めるとともに、山地、河川、平野、海域から構成されるわが国の典型的な集水域に本手法の適用を進めた。一方、新たな評価対象である上北地域は、海成段丘が広く分布し、波蝕および海食崖の後退等の特徴的な侵食現象を有している。こうした地域への三次元の地形変化と地下水流動を組み合わせた評価手法の適用性を拡大していくことを目的に、令和元年度において上北地域における浅海域の波蝕速度および海食崖の後退速度に関するモデル化の検討を開始した。

(2) 検討したモデル

基岩が広く露出する岩石海岸域において支配的な地形プロセスは、図 3.5-6 に示す波の作用による浅海底基岩の下方侵食（海食台の形成）、および陸上の崖の側方侵食（海食崖の形成・後退）である。これらの侵食作用により生産される砂礫は、波や沿岸流によって速やかに系外（沖合いや砂浜海岸）に運搬・除去されるため、漂砂の運動およびその連続の条件を無視することができる。

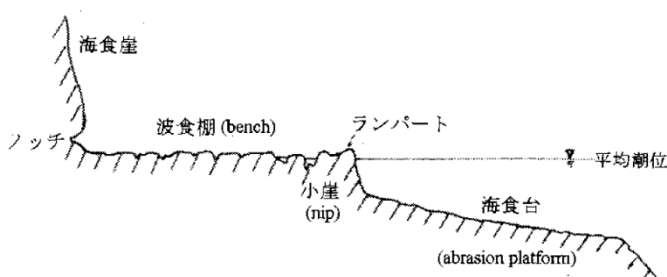


図 3.5-6 岩石海岸の模式断面⁽¹²⁾

今回検討したモデルは Sunamura (1992) ⁽¹³⁾ のモデルであり、以下の 2 式を考慮する。

・浅海域の波浪による海底面の侵食

浅海底基岩の侵食は、海面波動の引き起こす水粒子の往復運動が、基岩上の砂礫を揺り動かして削磨作用を及ぼすことにより進行する。水粒子の運動は水深の増加とともに指数関数的に低下する (Sunamura, 1992) ⁽¹³⁾。したがって、侵食による海底面の低下（波蝕）速度は、

$$\frac{dz}{dt} = Ae^{-Bz} \quad (3.5.1)$$

と表される。ここで、 z は水深、 t は時間、 A は汀線における侵食速度、 B は定数である。 A の値は主として岩質に関係し、日本の海岸の新第三系砂泥質岩域では $10^0 \sim 10^1$ mm/年のオーダーである (Sunamura, 1992) ⁽¹³⁾。 B は水深増大による侵食力低減の程度を示す値であり、海底基岩の侵食限界深度を $10 \sim 15$ m とすると、 $0.25 \sim 0.3$ の大きさとなる。 $B=0.3$ の場合、水深 15 m における侵食速度は、海岸線 ($z=0$) における $1/100$ となる。

・波浪による海食崖の後退速度（等速後退）

海食崖の後退による海岸線の水平位置 (x) の時間的变化は、次式によって表現される。

$$\frac{dx}{dt} = R \quad (3.5.2)$$

海食崖の後退する速度は、等速で後退すると表されている。海食崖の後退速度の例は、貝

塚 (1998) ⁽¹⁴⁾に示されている。後退速度は、水深 10m 以浅の波蝕棚の幅を計測し、後氷期の海水準がほぼ現在の水準に達した 5000 年間に形成されたとして推定している。これによれば、新第三紀堆積岩類の後退層度は 0.1m/年前後であり、これよりも古い堆積岩や火山岩および深成岩類などはこの 1/2 程度まで小さくなる。逆に第四紀堆積岩類（軟岩～未固結）では 0.2～0.8m/年と大きい。

上記の Sunamura による浅海域の波蝕速度および海食崖の後退速度のモデル式は、水谷 (2007) ⁽¹²⁾および井上・田中 (2015) ⁽¹⁵⁾での適用事例がある。上北地域への適用に先立ち、浅海域の波蝕速度および海食崖の後退速度のモデル式の導入による数値解析上の応答特性を調べ、水谷 (2007) ⁽¹²⁾による解析事例との比較により、その妥当性の確認を行った。その結果、海水準停滞時の地形変化のケースにおける平坦面形成と水深低下による緩斜面の勾配変化（解析例：図 3.5-7）や、海水準上昇時及び低下時における海水準速度の変化に応じた平坦面形成の応答（解析例：図 3.5-8）が確認でき、水谷 (2007) ⁽¹²⁾による解析事例との同等の結果が得られ、用いたアルゴリズムの妥当性を確認した。

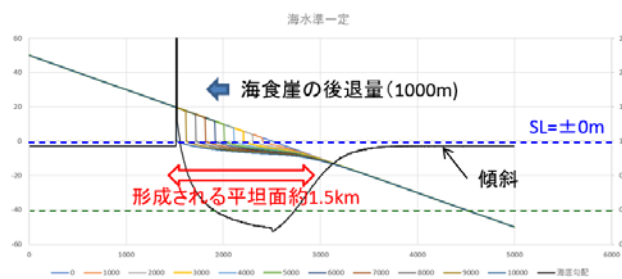


図 3.5-7 海水準停滞時の地形変化の応答解析結果

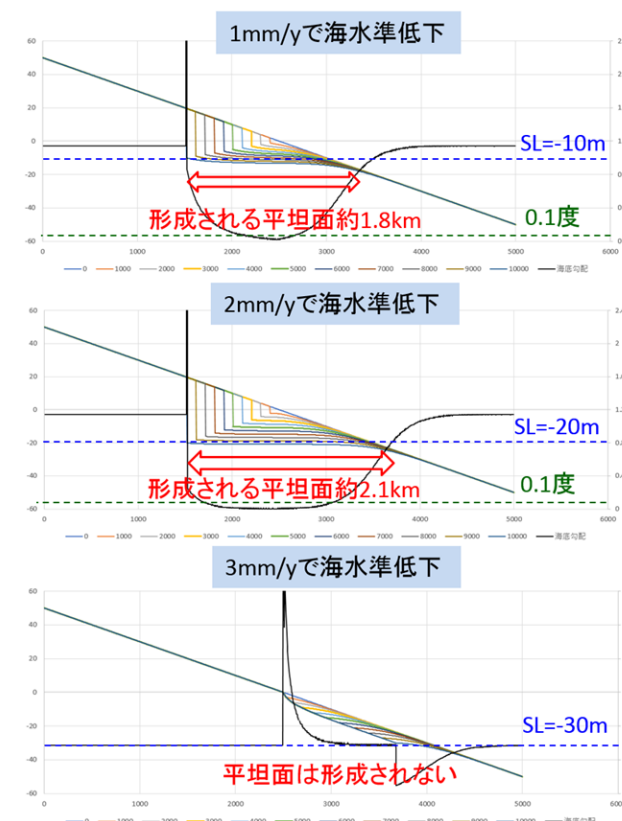


図 3.5-8 海水準低下時の地形変化の応答解析結果

(3) 上北地域におけるモデルの適用性検討

● 検討の流れ

上北地域におけるモデルの適用性検討は、図 3.5-9 に示す 2 つの断面に対し実施した。断面は小池・町田 (2001) ⁽¹⁾ の段丘面判読結果の MIS5e~MIS9 の 3 段の海成段丘を通り、海岸線にほぼ直交する位置とした。検討の流れは次の通りである：

①断面 1 におけるモデル・パラメータ検討

②断面 2 における①と共通なパラメータでの再現性検討

シミュレーション期間は、MIS9~5e における再現性を検討するため、MIS10 から現在までの 36 万年間とした。

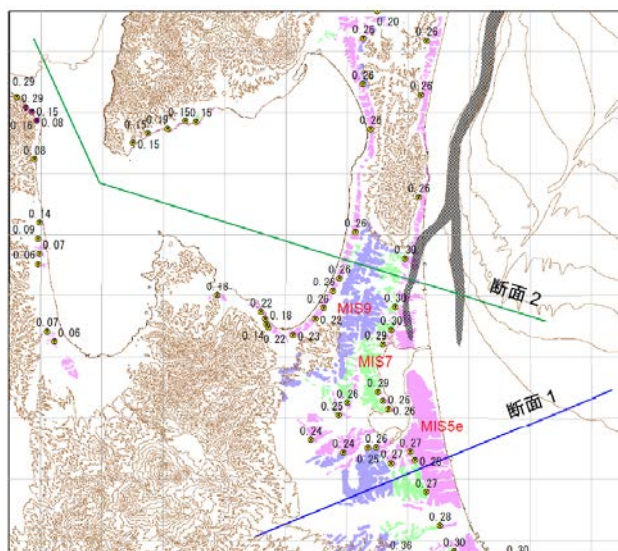


図 3.5-9 上北地域における断面の位置 (図内数値：隆起速度)

● 海水準変動の設定

36 万年間の海水準変動は 36 万~12.5 万年前までを EPICA (2004) ⁽¹⁶⁾ による海水準推定値を、12.5 万年前以降は Chappell(1994) ⁽¹⁷⁾ を用いた。なお、小池・町田 (2001) ⁽¹⁾ では MIS5e、MIS7 および MIS9 の最高海水準を+5m としている。一方、EPICA (2004) ⁽¹⁶⁾ では汎世界的な海水準の代表値であるためか、MIS7 の最高海水準は-16m となっている。MIS7 上面の形成深度を海水準-16m 程度とすると、0.25mm/年で 9 万年間隆起した MIS5e の時期には、MIS7 の段丘面高度は $-16\text{m} + 90\text{ky} \times 0.25 = 6.5\text{m}$ となる。MIS5e での海水準は+5m であるので、MIS5e が形成される高度と、隆起してきた MIS7 の段丘面高度はほぼ等しいことになり、両者には海食崖が形成されないことになってしまう。そこで、MIS7 の最高海水準は小池・町田 (2001) ⁽¹⁾ に倣い+5m とした。

● 初期地形

シミュレーションを開始する 36 万年前の地形は、原則として「接峰面-期間隆起量」とする。ただし凹状の地形となる区間においては、凹地形とならないように滑らかな斜面に修正した。また接峰面には風成層が含まれているが、MIS5e 以降の風成層は段丘面を一様に薄く覆っているため、接峰面には大きく影響しないと考えられる。

① 断面 1

波蝕速度および海食崖の後退速度モデルを用いた断面 1 の地形変化評価の結果例を図 3.5-10 に示す。

上北地域の断面 1 における現在の海成段丘分布位置や段丘崖の比高を再現させるためには

A=0.0010~0.0015、B=0.275~0.5、R=0.1 が適当と判断された。パラメータ A に関して、Sunamura (1992) (13)の解析事例では A=0.0019 を示しており、この値よりもやや小さい。A は一軸圧縮強度で代表されるような岩石物性に依存し、岩石物性が硬ければ A の値は小さくため、この可能性がある。パラメータ B に関しては、Sunamura (1992) (13)は鉛直方向の侵食速度の測定値から B=0.35 を求めており、断面 1 の解析による範囲に包含された値である。パラメータ R に関しては、水谷 (2007) (12)や井上・田中 (2015) (15)で R=0.1 を用いており、同程度の値となった。

以上のように、波蝕速度および海食崖の後退速度のモデルを用いた地形変化評価により、断面 1 で陸域に分布する MIS9~MIS5e の段丘位置や高度および段丘崖の比高を再現することができた。一方、シミュレーションでは水深 90m と 120m 付近に明瞭で幅広い平坦面が 2 段形成されており、これらの平坦面は現在の海底には形成されていない。ただし、この海底地形は沖積層を含めており、沖積層を除いた地形で確認する必要があると考えられる。

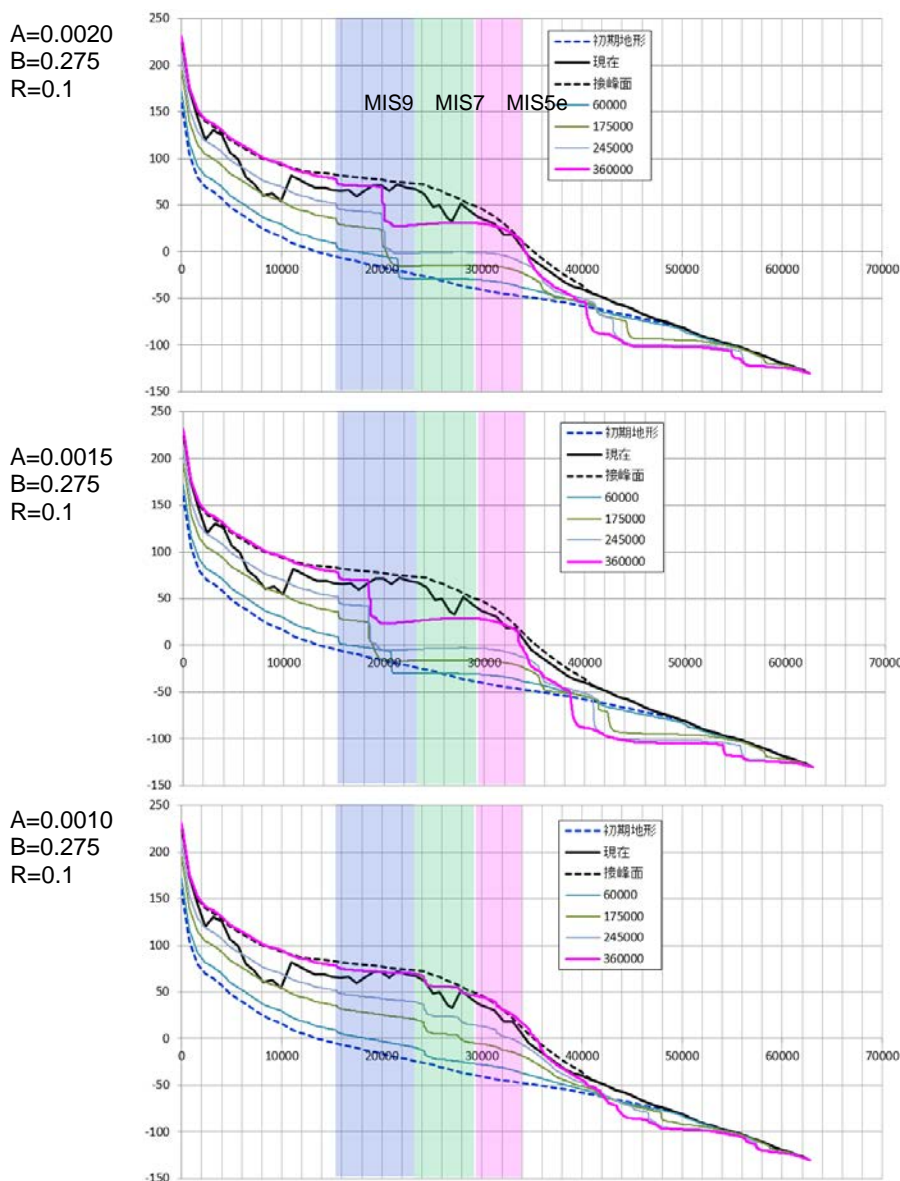


図 3.5-10 評価結果 (断面 1)

② 断面 2

①で推定したパラメータ ($A=0.0010\sim 0.0015$ 、 $B=0.275\sim 0.5$ 、 $R=0.1$) に基づき、断面 2 での地形変化評価を行った。図 3.5-11 は、断面 2 における下北半島～太平洋沿岸部の拡大図である。黒破線は現在の地表であり、太平洋側の沖合いでは沖積厚が判っているため、この基底を黒実線で示した。赤線は「沖積層基底- 地殻変動量」であり、これを参考に作成した初期地形を青線で示した。太平洋岸では、沿岸域に 30m 程度の沖積厚があると推定されている。

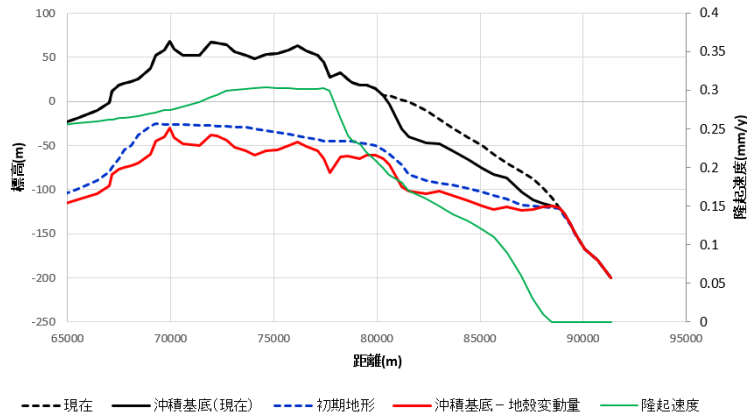


図 3.5-11 下北半島～太平洋岸の断面図

図 3.5-12 に、小池・町田 (2001) ⁽¹⁾による海成段丘の分布域を示す。当地域では下北半島の中央付近に南北に MIS9 の海成段丘面が分布し、この両側に MIS7 と MIS5e が分布する。ただし、西側では MIS7 の発達が悪く、断面でも明瞭ではない。中央の MIS9 および東側の MIS7 では平坦な海成段丘面が残っており、この両側の MIS5e は海側に傾く段丘面となっている。

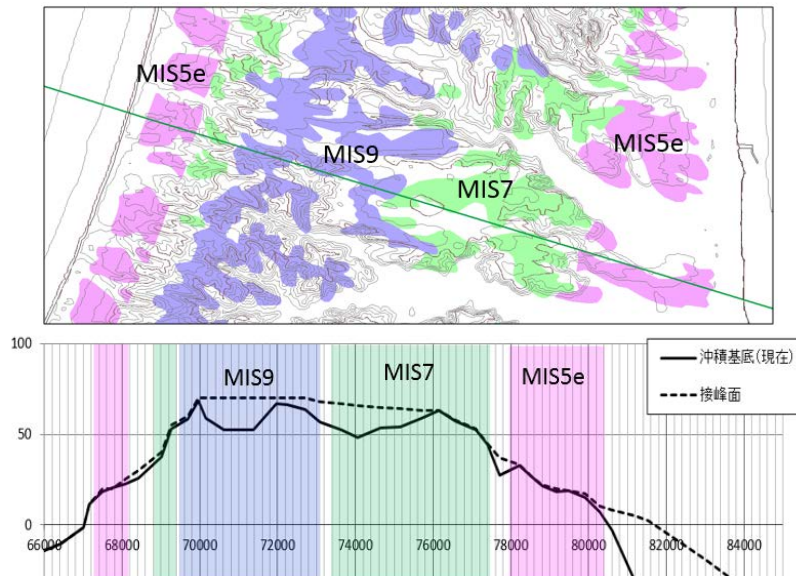


図 3.5-12 断面 2 での海成段丘の分布

①で推定したパラメータに基づき、 $A=0.0015$ 、 $B=0.5$ 、 $R=0.1$ として断面 2 における下北半島の海成段丘面の再現評価を行った結果を以下に示す。評価結果に対する陸域の拡大図を、図 3.5-13 に示す。6 万年後の MIS9、17.5 万年後の MIS7、24.5 万年後の MIS5e について、それぞれの形成時期の断面に対応している。矢印はそれぞれの時期に形成された海食崖位置を示す。これらは離水するために保存され、図で示した段丘崖 (▼) として保存される。



図 3.5-13 評価結果 (断面 2) (陸域)

6 万年後の MIS9 では 70~71km 区間に海食台となった部分が離水し、海成段丘面を形成する。MIS9 に段丘崖 (旧汀線) が形成されていない理由は、この地域が MIS9 以前には海面下にあり、陸域に形成される海食崖が形成されなかったことによる。小池・町田 (2001) ⁽¹⁾ で MIS9 の旧汀線高度が求められていない理由もこれと同じである。

17.5 万年後には比高の小さな海食崖で区切られた 2 段の平坦面が形成され、MIS7 の海成段丘面として離水する。ただし、西側では斜面が急であるために明瞭な MIS7 の段丘崖は形成されていない。最終的には MIS7 面は標高 80~70m 付近に位置することになる。

24.5 万年後には MIS5e の段丘崖が 78km 付近に新たに形成され、MIS7 末期に形成されていた崖は剝離され消失している。西側の 69km 地点でも MIS5e の段丘崖が形成され、これら段丘面は離水する。なお、MIS5e の段丘面は他の段丘と比較して海側に傾いており、これは MIS5e ~MIS5c の高海水準期 (+5m~-20m) が長期間継続したことによる。MIS5e の段丘崖基部の高度は標高 30~40m に位置する。

最後に、MIS1 の海進により 80km 付近に MIS1 と MIS5e を隔てる段丘崖が形成される。

以上のように、西側の MIS7 が形成されないことや、段丘崖の位置がやや異なるなどの相違点はあるが、形成された MIS7 と MIS5e の段丘面高度は当地域で認められる旧汀線高度とほぼ一致する。以上から、既往のモデルを用いて共通したパラメータにより上北地域の 2 断面で実際の沖積基底を再現できることを確認できた。

一方海底では (図 3.5-14 : 海域の拡大図)、低海水準期に規模の大きな海底段丘が形成されてしまい、実際の地形と一致していない。このような海底での広い緩斜面の形成は、井上・田中 (2015) ⁽¹⁵⁾ でも見られる。

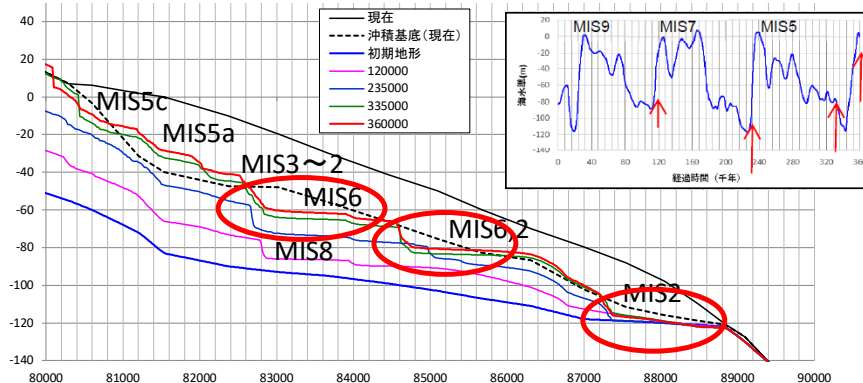


図 3.5-14 評価結果 (断面 2) (海域)

(4) モデルの再検討 (気候項の導入)

(3) で示した、低海水準期における現在には見られない平坦面の形成について検討するために、波浪の気候依存性をモデルに導入した。

● 波蝕の気候依存性に関する既往研究

・波のエネルギーと海食崖後退速度の関係

鈴木・真野 (1996)⁽¹⁸⁾は海食崖後退量の大きい福島県の海岸において、海底地形における屈折解析と観測された波高から海岸線での波のエネルギー強さを推定している。

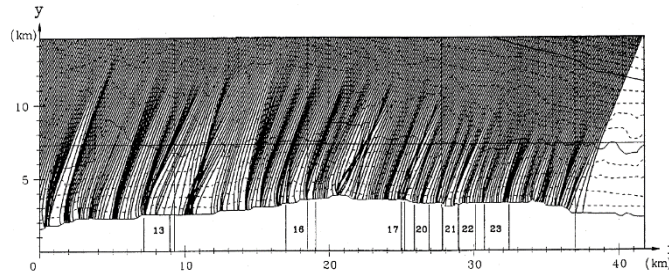


図 3.5-15 富岡における屈折解析の例

富岡地域における年平均汀線後退速度を空中写真から推定し、屈折解析の検討結果から波のエネルギーと後退速度との関係が比例関係にあることを示している。

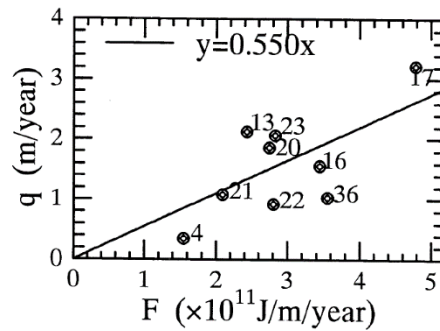


図 3.5-16 波のエネルギーFと海食崖後退速度qとの関係

・海水温と波のエネルギーの関係

Reguero et al. (2019)⁽¹⁹⁾では、過去 60 年間 (1950~2010) の波の周期スペクトルを世界において収集し、スペクトル解析から波のエネルギーの 60 年間の変化を推定している。また、収集地点での海水温から、波のエネルギーは海水温と比例関係にあるとしている。

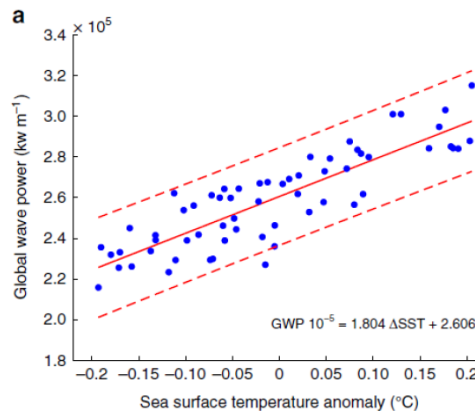


図 3.5-17 海水温と波のエネルギーの関係

Reguero et al.,(2019)⁽¹⁹⁾によれば、海水温が 0.4℃低下すると波のエネルギーは 24%程度低下するとしている。この計算を外挿すると海水温が 1.4℃低下すれば波のエネルギーは 0 になってしまうため、ここでは海水温が低下すると比例的に波のエネルギーが低下すると仮定した。日本周辺では海水温は最寒冷期に 5～10℃程度低下したと推定されるが、最寒冷期でも海は凍結していないため波のエネルギーは 0 にはならない。ここでは最寒冷期での波のエネルギー減衰量が不明であるため、現在の地形断面を再現することによって寒冷期の波のエネルギー減衰量を推定した。

以上に基づき、波蝕の気候依存性を既往のモデルに取り入れた。気候項 F を $F = (SL + K)/K$ (SL : 海水準, K : 減衰係数) (3.8.3)

と定義し、既往のモデルを以下のように変更した。

$$\partial u / \partial t = F \cdot A e^{-Bz}, \quad \partial x / \partial t = F \cdot R \quad (3.8.4)$$

波のエネルギーの減衰係数を乗じた場合、図 3.5-18 に示すように海水準低下に伴う波のエネルギーは減衰し、海底面の侵食と海食崖の後退速度は減少することになる。

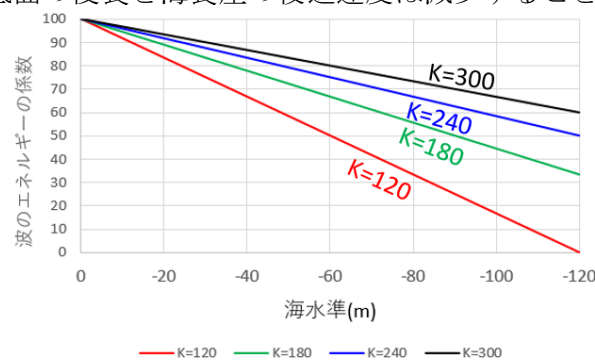


図 3.5-18 波のエネルギー減衰係数

$K \sim 240$ (最寒冷期に波のエネルギーが約 50%減少) の場合に、断面 1 および断面 2 における現在の沖積基底をよく再現することを確認した (図 3.5-19)

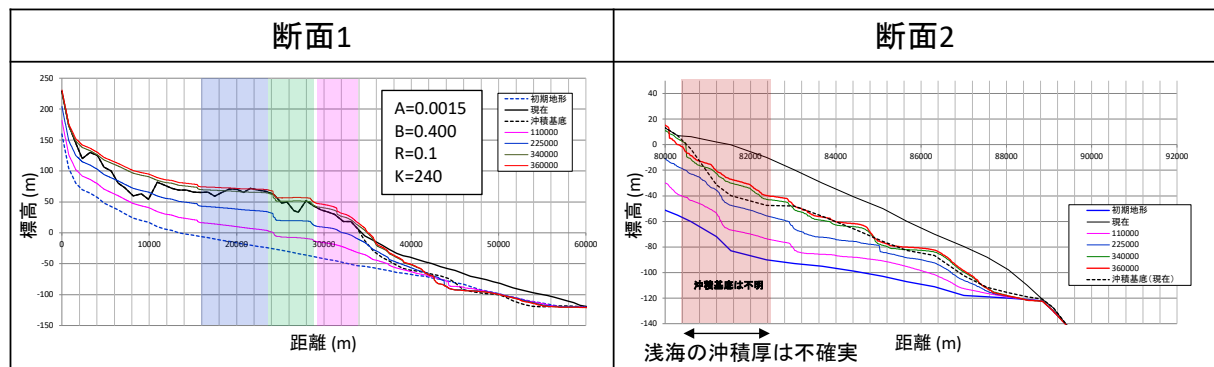


図 3.5-19 断面 1 および断面 2 の評価結果 (気候項を考慮)

(5) まとめ

本項目では、既往のモデル (浅海域の波浪による海底面の侵食・波浪による海食崖の後退) を用いて、上北地域に設定した 2 断面に対して、MIS10 (36 万年前) からのシミュレーションにより、現在の沖積基底の再現性を検討した。その結果、既往のモデルでは共通したパラメータで現在の沖積基底をおおよそ再現できたが、現在には見られない平坦面が低海水準期に形成された。これに対し海水温と波のエネルギーの関係性を気候項として既往のモデルに取り入れた結果、現在の沖積基底を再現でき、3次元の地形変化評価において適用できる見込みが得られた。

第3章の参考文献

3.2

- (1) SKB, Safety analysis for SFR. Long-term safety. Main report for the safety assessment SR-PSU, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-14-01 (2014).
- (2) Odén, M., Follin, S., Öhman, J., Vidstrand, P., SR-PSU Bedrock hydrogeology. Groundwater flow modelling methodology, setup and results, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-13-25 (2014).
- (3) Abarca, E., Idiart, A., de Vries, L. M., Silva, O., Molinero J, von Schenck H. Flow modelling on the repository scale for the safety assessment SR-PSU, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-13-08 (2013).
- (4) SKB, Radionuclide transport and dose calculations for the safety assessment SR-PSU, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-14-09 (2014).
- (5) SKB, Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project, Volume I, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB-TR-11-01 (2011).
- (6) Joyce, S., Simpson, T., Hartley, L., Applegate, D., Hoek, J., Jackson, P., Swan, D., Marsic, N., Follin, S., Groundwater flow modelling of periods with temperate climate conditions – Forsmark, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-09-20 (2010).
- (7) Vidstrand, P., Follin, S., Zugec, N., Groundwater flow modelling of periods with periglacial and glacial climate conditions – Forsmark, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-09-21 (2010).
- (8) Jan-Olof Selroos, SR-Site groundwater flow modelling methodology, setup and results, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-09-22 (2010).
- (9) SKB, Radionuclide transport report for the safety assessment SR-Site, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-10-50 (2010).
- (10) J. G. Holmen, M. Stigsson, Modelling of future hydrogeological conditions at SFR, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-01-02 (2001).
- (11) SKB, Climate and climate related issues for the safety assessment SR-PSU, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-13-05 (2014).
- (12) Öhman, J., Follin, S., Odén, M., SR-PSU Hydrogeological modelling. TD11 – Temperate climate conditions, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB P-14-04 (2014).
- (13) IPCC, Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA (2013) 1535p.
- (14) D. Texier et al., Modeling Sequential Biosphere Systems under Climate Change for Radioactive Waste Disposal, 10th International High Level Radioactive Waste Management, Conference, Las Vegas, USA, Proceedings (2003) pp.202–212.
- (15) M. F. Loutser and A. Berger, Future Climatic Changes: Are We Entering an Exceptionally Long Interglacial?, Climatic Change. 46 (2000) pp.61–90.
- (16) BIOPROTA, BIOMASS 2020: Interim report, BIOPROTA report produced in association with IAEA MODARIA II working group 6, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB R-18-02 (2018).
- (17) Radioactive Waste Management, Geological Disposal Geosphere Status Report, NDA Report, DSSC/453/01 (2016).
- (18) SKB, Climate and climate related issues for the safety assessment SR-PSU, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB TR-13-05 (2014).
- (19) N. Pimenoff et al., Climate and Sea Level Scenarios for Olkiluoto for the Next 10,000 Years, Posiva Oy, POSIVA 2012-26 (2012).
- (20) IAEA 2019, Development of a Common Framework for Addressing Climate Change in Post-Closure Radiological Assessment of Solid Radioactive Waste Disposal, Final Report of Working Group 6 of MODARIA: Topical Heading—Uncertainties and Variability, Modelling and Data for Radiological Impact Assessments (MODARIA) Programme (Vienna: International Atomic

- Energy Agency) (in preparation).
- (21) C.M. Goodess, S.J. Watkins, J.P. Palutikof and M.C. Thorne, The Construction of Global Eustatic Sea-level Scenarios for the Next 150,000 Years. Climatic Research Unit Research Paper Number 3 (Second Series) Version 4 (2004).
 - (22) M.K. Hagdorn, Reconstruction of the Past and Forecast of the Future European and British Ice Sheets and Associated Sea-level Change. PhD thesis, University of Edinburgh (2003).
 - (23) Jouzel, J. et al., Extending the Vostok ice-record of palaeoclimate to the penultimate glacial period, *Nature*. 364 (1993) pp.407-411.
 - (24) P. Burgess et al., Two-dimensional Modeling of Past and Future Climate Change and Comparison with PMIP Simulations (1999).
 - (25) 日本原子力研究開発機構, 平成 21 年度地層処分に係る水文地質学的変化による影響に関する調査報告書, 平成 22 年 3 月 (2010).

3.3

- (1) 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度廃棄物埋設地の安全評価に関する調査報告書, 平成 30 年 3 月 (2018).
- (2) 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度廃棄物埋設地の安全評価に関する調査報告書, 平成 31 年 3 月 (2019).
- (3) Max D. Morris, Factorial Sampling Plans for Preliminary Computational Experiments, *Technometrics*. 33(2) (1991) pp. 161-174.
- (4) 花谷育雄, 宗像雅広, 木村英雄, 三箇智二, 堆積岩分布地域における地形変化のモデル化に関する研究～房総半島における検討, *原子力バックエンド研究*. 18(1) (2011).
- (5) Chappell, J., Upper Quaternary sea levels, Coral Terraces, oxygen isotopes and deep-sea temperatures, *Journal of Geography*. 103(7) (1994) pp.828-840.
- (6) 小池一之, 町田洋, 日本の海成段丘アトラス, 東京大学出版会, (2001) 122p.
- (7) 藤原 治, 柳田 誠, 三箇智二, 守屋俊文, 地層処分からみた日本列島の隆起・侵食に関する研究, *原子力バックエンド研究*. 11 (2005) pp.113-124.
- (8) 三箇智二, 安江健一, 河床縦断形のシミュレーション, *地形*. 29(1) (2008) pp.27-49.
- (9) 中川毅, TARASOV, Pavel E., 西田詩, 安田喜憲, 日本海沿岸, 北陸地方における最終氷期一完新世変動に伴う気温と季節性の変動の復元, *地学雑誌*. 111 (6) (2002) pp.900-911.
- (10) 岡孝雄, 北海道渡島半島, 後志利別川低地の沖積層一低位段丘上の遺跡と超軟弱泥層 (縄文海進最高海面期) の関係を中心として一, 北海道立地質研究所報告, 第 80 号 (2009) pp.63-109.
- (11) H. Kimura, et al., THE 3D-SEEP COMPUTER CODE USER'S MANUAL, Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI-M-86-091 (1986).
- (12) 地圏環境テクノロジー, 国土水循環モデルの開発状況 第 15 回 GETFLOWS ユーザー会議資料 (2015) 48p.
- (13) 熊本創, 下茂道人, 三枝博光, 尾上博則, 孔間水理試験データを餅田地下水流動モデルのキャリブレーション, 第 36 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集, 土木学会 (2007) pp.287-292.
- (14) 登坂博行, 地質時間にわたる淡塩漸移帯の形成過程と形態変化に関する数値解析的検討 (その 2) -動的境界条件下における検討-, *応用地質*. 43(5) (2002).
- (15) 電気事業連合会, 原子力発電所等の廃止措置及び放射性廃棄物の処分について, 第 2 回廃炉に伴う放射性廃棄物の規制に関する検討チーム会合. (平成 27 年 2 月) (2015).
- (16) 日本原子力学会, 余裕深度処分の安全評価手法: 2008, AESJ-SC-F012:2008. (2009) 156p.
- (17) 電気事業連合会, 余裕深度処分対象廃棄物に関する基本データ集 (一部改定), 平成 28 年 8 月 23 日 (2016).
- (18) 菅谷敏克, 曾根智之, 中谷隆良, 石戸谷公英, 船橋英之ほか, 余裕深度処分における基本・変動シナリオにかかわる検討・評価, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Research 2009-063

- (2010).
- (19) 武田聖司, 木村英雄, 確率論的評価手法 GSRW-PSA による地層処分システムの不確かさ解析: パラメータ不確かさおよび天然バリアの概念モデル不確かさの検討, 日本原子力科学研究所, JAREI-Research 2002-014 (2002).
- (20) R. L. Iman and M. J. Shortencarier, A FORTRAN 77 Program and User's Guide for the Generation of Latin Hypercube and Random Samples for Use with Computer Models, U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-3624 (1984).
- (21) Kimura, H., Takahashi, T., Shima, S., Matsuzuru, H., A Generic Safety Assessment Code For Geological Disposal of Radioactive Waste: GSRW Computer Code User's Manual, Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI-M 92-161 (1992).
- (22) 本間俊充, 笹原孝, 確率論的システム評価コードによる不確かさ・感度解析 (I), 日本原子力科学研究所, JAERI-M 93-207 (1993).
- (23) A. Saltelli, T. Homma, LISA PACKAGE USER GUIDE Part III, SPOP (Statistical POst Processor) Uncertainty and Sensitivity Analysis for Model Output. Program Description and User Guide, CEC/JRC Scientific & Technical Report EUR 13924 EN (1992).
- (24) 日本原子力研究開発機構, 平成 19 年度 放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査 (2008).
- (25) 日本原子力研究開発機構, 平成 20 年度 放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査 (2009).
- (26) 日本原子力研究開発機構, 平成 21 年度 放射性廃棄物処分の長期的評価手法の調査 (2010).
- (27) 日本原子力研究開発機構, 平成 22 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 (2011).
- (28) 日本原子力研究開発機構, 平成 23 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 (2012).
- (29) 日本原子力研究開発機構, 平成 24 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 (2013).
- (30) 日本原子力研究開発機構, 平成 25 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 (安全審査に向けた評価手法の整備) (2014).
- (31) 日本原子力研究開発機構, 平成 26 年度 地層処分の安全審査に向けた評価手法等の整備 (安全審査に向けた評価手法の整備) (2015).
- (32) 日本原子力研究開発機構, 平成 27 年度 燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査 (2016).
- (33) 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 (2005).
- (34) 辻智之, 中村康雄, 中谷隆良, 余裕深度処分における溶出率による影響評価について, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Technology 2015-014 (2015).
- (35) 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 (2000).
- (36) 北村暁, 近沢孝弘, 赤堀邦晃, 舘幸男, 諸外国における使用済燃料直接処分のソースターム評価- (2) 使用済燃料および構造材の溶解速度評価, 原子力バックエンド研究. 23(1), (2016) pp.55-72.
- (37) SKB, Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark – Main report of the SR-Site project (3 volumes), Svensk Kärnbränslehantering AB, TR-11-01 (2011).
- (38) POSIVA, Safety case for the disposal of spent nuclear fuel at Olkiluoto – Models and data for the repository system 2012, Posiva Oy, POSIVA 2013-01 (2013).
- (39) Johnson, L., A model for radionuclide release from spent UO₂ and MOX fuel, Nagra, Arbeitsbericht NAB 13-37 (2014).
- (40) Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA): Dossier 2005 Argile – Synthesis: Evaluation of the feasibility of a geological repository in an argillaceous formation (2005).

- (41) Baston, G., Preston, S., Otlet, R., Walker, A., Clacher, A., Kircham, M., Swift, B., Carbon-14 Release from Oldbury Graphite, AMEC, AMEC/5352/002 Issue 3 (2014).
- (42) 三原守弘, TRU 廃棄物処分システムの安全評価における核種移行データセットー RAMDA : Radio-nuclide Migration Datasetsー, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Review 2006-011 (2006).

3.4

- (1) 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 (2005).
- (2) 菅谷敏克, 曾根智之, 中谷隆良, 石戸谷公英, 船橋英之ほか, 余裕深度処分における基本・変動シナリオにかかわる検討・評価, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Research 2009-063 (2010).
- (3) 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度廃棄物埋設地の安全評価に関する調査報告書, 平成 30 年 3 月 (2018).
- (4) 青柳和平, 窪田健二, 中田英二, 末永弘, 野原慎太郎, 幌延深地層研究施設における掘削影響領域の評価(その2)ー深度 250m を対象とした試験ー(共同研究), 日本原子力研究開発機構, JAEA-Research 2017-004 (2017).

3.5

- (1) 小池一之, 町田洋, 日本の海成段丘アトラス, 東京大学出版会 (2001) 122p.
- (2) 藤原治, 三箇智二, 大森博雄, 日本列島における侵食速度の分布, サイクル機構技報. 5 (1999) pp.85-93.
- (3) 上村不二男, 対馬坤六, 斎藤正次, 5 万分の 1 地質図幅説明書「蟹田」, 地質調査所 (1959).
- (4) 梅田浩司, 日本の地盤を対象とした透水係数データベースの作成 公開資料, 動力炉・核燃料開発事業団 東濃地科学センター, PNC TN7450 96-002 (1996).
- (5) 地圏テクノロジー, 国土水循環モデルの開発状況 第 15 回 GETFLOWS ユーザー会議資料 (2015).
- (6) 熊本創, 下茂道人, 三枝博光, 尾上博則, 孔間水理試験データを餅田地下水流動モデルのキャリブレーション, 第 36 回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集. 土木学会. (2007) pp.287-292.
- (7) 今井久, 山下亮, 塩崎功, 浦野和彦, 笠博義, 丸山能生, 新里忠史, 前川恵輔, 地下水流動に対する地質環境の長期的変遷の影響に関する研究, 日本原子力研究開発機構, JAEA-Research 2009-001 (2009).
- (8) 川越健, 浦越拓野, 池尻健, 湧水を伴う砂質土地山の安定性評価の検討, 土木学会第 63 回年次学術講演会, 3-356 (2008) pp.711-712.
- (9) 中村大, 後藤隆司, 伊藤陽司, 山下聡, 川口貴之, 片岡沙都紀, 乾燥状態と湿潤状態における岩石の強度の差異に関する研究, 地盤工学会技術報告集. 52 (2010) pp.157-164.
- (10) 小島圭二, 中尾健児, 地質技術の基礎と実務, 鹿島出版会 (1995) 391p.
- (11) 地盤工学会編, 比貯留係数 S_s の代表値(資料 5-01), 地下水調査に用いる井戸理論式の整理及び解説(2017 年度版) (2017).
- (12) 水谷武司, 数理地形学, 古今書院 (2007) 199p.
- (13) Sumamura, T., Geomorphology of rocky coast. John Wiley & Sons, New York (1992) 302p.
- (14) 貝塚爽平, 発達史地形学, 東京大学出版会 (1998) 286p.
- (15) 井上信, 田中靖, 数値シミュレーションを用いた海成段丘の形成に関する考察, 全地連「技術フォーラム 2015」名古屋講演予稿集 (2015)
- (16) EPICA community members, Eight glacial cycles from an Antarctic ice core, Nature. 429(10),

- (2004) pp.623–628.
- (17) Chappell, J., Upper Quaternary sea levels, Coral Terraces, oxygen isotopes and deep-sea temperatures, *Journal of Geography*. 103(7) (1994) pp.828–840.
- (18) 鈴木成典, 真野明, 福島海岸における波浪と海食崖の応答解析, *海岸工学論文集*. 43 (1996) pp.562–565.
- (19) Reguero, B. G., Losada, I. J., Méndez, F. J., A recent increase in global wave power as consequence of oceanic warming, *Nature communications*. 10(1), (2019) pp.1–14.