

高レベル放射性廃棄物の地層処分 技術に関する知識基盤の構築

—平成17年取りまとめ—

—分冊3 安全評価手法の開発—

2005年9月22日

核燃料サイクル開発機構

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

電話: 029-282-1122 (代表)
ファックス: 029-282-7980
電子メール: jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2005

要 約

本報告書は、第2次取りまとめ以降処分事業や安全規制に関する動向を踏まえ、核燃料サイクル開発機構が実施してきた安全評価手法の開発の成果を取りまとめたものである。その内容は、核燃料サイクル開発機構が課題評価委員会による評価を受けながら策定した「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の全体計画」（以下、「全体計画」という）に示された目標および課題に対応したものになっている。

全体計画で示された第2次取りまとめ以降の安全評価手法の高度化に関する目標は、これまで整備してきた安全評価に関連する様々なモデルや手法を、実際の地質環境へ適用することを通じて、その信頼性を確認していくこと（実際の地質環境への地層処分技術の適用性確認）および処分システムに関連する現象への理解を深め、評価の信頼性を高めていくこと（地層処分システムの長期挙動の理解）である。第2次取りまとめ以降の安全評価手法の高度化については、以下の4つの課題について取り組むこととした。

①核種移行のデータベース整備

核種移行パラメータについては、第2次取りまとめで使用した溶解度、収着、拡散などの核種移行パラメータの信頼性向上および拡充を目的とし、還元雰囲気、炭酸系でのアクチノイド元素の溶存化学種の明確化、海水系や堆積岩系を対象としたデータの拡充などを行うこととした。また、透明性を高めるためにデータベースを定期的に更新・公開することとした。

②安全評価モデルの高度化

安全評価モデルの高度化については、重要現象の理解とモデル化を通じて安全評価解析の信頼性を向上させるため、亀裂中の水理・物質移行現象、堆積岩中の水理・物質移行現象、ガラスの長期溶解挙動、核種の溶解現象、核種の収着・拡散現象、コロイドなどの影響評価について現象理解を進め、個別現象モデルを開発・改良することとした。また、実際の地質環境の重要な特徴のモデルへの取り込みを図るため、水理地質構造モデルと生物圏評価モデルについて必要な検討・改良を行うとともに、深部地下水の水質予測の信頼性を高めるために、地下水水質のモデル化について検討することとした。

さらに、不確実性の取扱い技術を向上させるため、不均質性が重要となる地下水流動の分野において、堆積プロセスを考慮した地質構造推定技術、地下水流動解析結果の不確実性定量化技術や原位置トレーサー試験より得られる水理・物質移行特性値の不確実性について検討することとした。

③安全評価手法の整備・高度化

安全評価の信頼性を確保するためには、モデルやデータの信頼性を高めるだけでなく、追跡性、透明性やわかりやすさなどを確保すること、不確実性が適切に取り扱われていること、評価者と研究者や調査担当者との間で適切なコミュニケーションが確保され評価の品質が保証されていることなどが必要とされている。こうした課題に対処するために、シナリオ解析技術、天然現象影響評価技術、不確実性評価技術の技術開発、技術情報の統合技術の開発に取り組むこととした。

④安全評価手法の適用性確認

安全評価手法の適用性確認については、データ整備、現象理解・モデル化、安全評価手法の個別技術について、改良した技術を実際の地質環境に適用することにより、実際の地質環境を対象とする場合の留意点・課題の抽出を行うとともに、地質環境の調査・評価から物質移行解析に至る一連の評価の中で、評価項目間の重要な接続部分における作業手順の開発と試行を行うこととした。

なお、本報告書で取扱う課題は、第2次取りまとめと異なり安全評価関連の全分野を網羅的にカバーするのではなく、安全評価の基盤として現象理解、モデル開発、データベース開発、

手法開発などの中から、重要な課題を選択して実施している。

本報告書は、全6章から構成されている。第1章は全体計画に基づく目標および課題と研究の進め方を示している。第2章（核種移行データベースの整備）、第3章（安全評価モデルの高度化）、第4章（安全評価手法の整備・高度化）、第5章（安全評価手法の適用性確認）の各項目においては、課題を設定した背景、第2次取りまとめ以降の進捗と事業・規制への反映、今後の課題について記述した。課題を設定した背景においては、どのように第2次取りまとめの課題、国際的動向、事業・規制のニーズなどを考慮して課題を設定したかを記述した。第2次取りまとめ以降の進捗と事業・規制への反映においては、各課題において得られた成果の安全評価および事業・規制における位置づけや反映点について記述した。また、最後に今後の課題として、次のフェーズで取り組むべき課題について記述した。第6章では、第2次取りまとめ以降の研究の進捗および事業・規制への反映点を要約した。

以下に、第2次取りまとめ以降の進捗を中心に各項目の概要を述べる。

核種移行データベースの整備

放射性元素の熱力学データベースの整備については、アクチニド IV 価の水酸化炭酸錯体やアモルファス含水酸化物の溶解度積や加水分解定数などの熱力学データを取得し、既存データとの比較などを踏まえ、その信頼性の向上を図った。また、放射性元素の熱力学データベース（JNC-TDB）について、最新の経済協力開発機構・原子力機関の熱力学データベース（OECD/NEA TDB）も含めて、各種地球化学計算コードに対応したフォーマットに変換し、透明性、客観性の確保などの観点から外部公開ホームページ上で一般に公開した。本データベースへの国内外の利用者登録は、2005年7月時点で300名を突破しており、利用者からの指摘に対する改訂も行なっている。

収着・拡散データベースの整備については、幅広い地質環境への適用性を考慮して、セシウム、セレン、スズなどの海水系環境などにおける堆積岩に対する収着データを拡充した。また、核種の収着データベース（JNC-SDB）についても、JNC-TDBと同じく、透明性、客観性の確保などの観点から外部公開ホームページ上で一般に公開した。利用者登録数は熱力学データベースに同じである。また、1998～2003年に公開された収着データ約1,200件を追加、更新した。データ数が増えたことにより、セシウム、アメリカシウムなどの元素の分配係数のイオン強度や pH に対する依存性がより明確になり、イオン交換や表面錯体反応といったメカニズム推定に有効なものとなった。さらに、2万件を超える収着データの信頼度付与のための指標を作成した。核種の収着データベース開発などにより、社団法人日本原子力学会標準化委員会の活動の一環で行われている深地層の分配係数の測定方法の標準化作業に汎用的な条件や方法などの基盤情報が提供できた。

安全評価モデルの高度化

岩盤中水理・物質移行モデルの高度化については、地上からの調査段階で必要となる地下水流動解析の信頼性向上に資するモデル化技術の整備として、以下の成果が得られた。

- データの少ない広域とデータの多い処分場近傍領域を同時に解析するために、亀裂ネットワークモデルと連続体モデルを接続した「入れ子式モデル」を開発するとともに、その有効性を確認した。
- 間隙水圧データから地下深部の透水係数を推定する技術を、幌延地域で観測されている間隙水圧データに適用し、稚内層で観測された高い間隙水圧は、稚内層あるいはその上位の声問層の上部に低透水性の地層が存在することに起因する可能性が示唆され、本手法を用いることにより、対象地域の地下水流動に影響を及ぼす可能性がある要因を抽出し、調査や解析にフィードバックできる可能性が示された。
- 水理と地下水水質変化を統一的にモデル化するために、ケモメトリックス法とバックワードトラッキングを組み合わせて地下水の端成分の混合割合の時間変化をモデル化する手法

を開発し、スウェーデンのエスポ地下研究施設周辺地域における坑道掘削に伴う水質変化の予測解析に適用した。その結果、本手法が水理地質構造モデルの信頼性の確認とともに、間隙率の補正にも有効であることが分かった。

- ・ 定量的知見だけでなく定性的な地質学的データなども考慮することがモデルの信頼性向上に有効であるため、堆積プロセスを考慮して堆積岩中の不均質な堆積構造を再現することにより地質構造モデルの不確実性を推定する手法を開発した。
- ・ 水理解析から物質移行解析に受け渡す重要情報となる移行経路長は、透水係数の不均質性の影響を受けるため、移行経路長などの不確実性を確率有限要素法を用いて評価する手法を提案するとともに、モンテカルロ法との比較・検討を行った。

また、結晶質岩・堆積岩について安全評価上重要となる亀裂を対象とした水理・物質移行の現象理解に関して以下の成果が得られた。

- ・ 1 ケースではあるが亀裂交差部と交差部周辺の亀裂の透水性を測定し、亀裂交差部は周辺の亀裂より透水性が高く、移行経路となりうることを示した。
- ・ 亀裂充填物質の拡散係数を測定し、移流間隙と接する岩石基質部に拡散するだけでなく、亀裂充填物質を介して亀裂面全体からマトリクス拡散が起きうる可能性があることを示した。また、トレーサー試験に基づき安全評価で用いるパラメータを解釈するに当たっては、亀裂充填物質の影響を考慮する必要性があることを示した。
- ・ 原位置トレーサー試験からパラメータ値とその不確実性を推定する手法を開発した。
- ・ 新第三紀堆積岩中の亀裂の影響を、コアを用いた室内試験で評価し、間隙率の異なる堆積岩で亀裂が移行経路になり得る場合とそうでない場合があることが示され、実際のサイトでは亀裂の影響を確認する必要性があることが示唆された。また、物質移行開口幅と透水量係数の相関性については、第2次取りまとめの知見が堆積岩においても利用可能であることを示した。

地下水・間隙水水質形成モデルのうち、地下水水質に関しては、幌延の深地層の研究施設計画や茂原地域においてボーリング孔から採水され地表で測定された地下水データに基づき、地下深部での pH、Eh などの値を熱力学的手法により推定し、地表からの調査段階において深部地下水水質を測定することが困難な場合の推定方法を提示した。間隙水水質に関しては、圧縮ベントナイト中の間隙水の pH の時空間変化を直接測定する技術を開発した。また、セメントに起因して発生する高アルカリ溶液とベントナイトの変質を検討する際に必要な鉱物などに関する熱力学データベースを整備した。

現象論的核種移行モデルの開発のうち、ガラスの長期浸出挙動では、変質鉱物として pH11 以上では方沸石、pH11 以下ではスメクタイトの生成が確認され、方沸石生成の場合はガラス溶解が加速されることがわかった。核種の溶解現象では、溶解度制限固相の変遷について、トリウムに引き続き、ウランについても溶液中において非晶質含水酸化物の結晶性酸化物への変化が確認され、第2次取りまとめにおける溶解度制限固相の設定が保守的であることが示された。また、固溶体モデルの開発について、ネプツニウム IV 価とウラン IV 価が混合したアモルファス含水酸化物の溶解挙動が理想固溶体モデルで表現できることを示した。さらに、ラジウム（バリウム）とカルシウムが混合した炭酸塩の共沈挙動について、元素分配比の方解石沈殿速度依存性を取得するとともに、ラジウム（バリウム）の溶解挙動が、非理想系の固溶体モデルにより解釈できることを示した。収着拡散挙動では、収着メカニズムに基づくモデルの妥当性を確認するとともに、現状では適用可能な元素には制限があるものの、環境条件に対応した分配係数値の推定および環境条件の変化に対する感度の予測が可能となった。さらに、緩衝材中の微細間隙構造中における各イオンの移行経路などに関する現象理解が進んだ。

コロイド、有機物および微生物のうち、コロイド影響に関する研究では、原位置地下水の中のコロイド特性（濃度・粒径分布）などを評価した。圧縮ベントナイトによるコロイドフィルター効果を均質化モデルにより検討し、コロイドろ過に必要な有効粘土密度を計算した。

セシウムのコロイドに対する吸着性は粉末状ベントナイトより大きいことを確認した。さらに、亀裂性媒体と多孔質媒体の両方に適用可能であり核種のコロイドへの吸着速度を考慮できる核種移行計算コードを開発し、海外の地下研究施設における原位置試験においてその有効性を確認した。有機物の影響に関する研究では、実際の地下水中の有機物の同定と濃度測定を行った。圧縮ベントナイトへの有機物透過特性を調査し、蒸留水条件に比べ人工海水条件下では透過しやすいことを確認した。有機物と核種の相互作用については、トリウム、ネプツニウム IV 価と有機物の相互作用について錯生成定数を取得した。また、トリウムは溶液中の炭酸濃度がある程度以上の場合には有意に錯体を形成しないことを確認した。微生物影響に関する研究では、微生物がコロイド的挙動をする場合、微生物濃度によっては核種移行が促進される可能性があることを示した。

生物圏評価モデルの高度化については、実際の地表環境の特徴を考慮するため、希釈などの効果に大きく係わる地質環境と生物圏とのインターフェース（GBI）を実際の地表環境に応じて設定するための着眼点や考え方、および設定上考慮すべき要因を把握するための調査項目を概略的に検討した。また、海域を GBI としたモデル、下部土壌を GBI としたモデル、気候変動を考慮したモデルなどを拡充した。さらに、実際のサイトにおいて、パラメータの重要度と設定状況に基づき優先的に取得すべきデータを絞り込む手順を作成した。線量およびリスク以外の安全指標としての天然放射性核種の濃度とフラックスについて、基盤的情報としてわが国における天然放射性核種の濃度とフラックスのデータを収集・整理するとともに、集水域に着目した天然放射性核種のフラックスの算出方法を例示した。

安全評価手法の整備・高度化

シナリオ解析技術については、シナリオ解析において重要である反面複雑で時間を要する主要な原因となっていた FEP の相関関係の整理に対して、FEP の相関関係をマトリクス形式で表現することに加え、安全機能という結果側の視点からの階層的整理を行うことにより構造化するとともに、計算機上に展開することにより、相関関係の十分性の確保、作業の効率化、および作業の追跡性・透明性の確保を可能とする技術を開発した。

天然現象影響評価技術に関しては、地質学的知見をより合理的に評価に反映することにより過度の保守性を排除可能とするとともに、整合性・追跡性についても確保可能な作業フレームを整備した。

不確実性評価技術のうち、パラメータの分布設定技術については、誘出法を用いた分布設定手順の検討および試行から、分布設定手順を具体化するとともに、留意点として、パラメータの変動要因について専門家間で情報を共有することが重要であるとの知見を得た。データ不確実性の影響の定量化については、複数のデータの不確実性が同時に存在する場合の影響をモンテカルロシミュレーションで評価可能な核種移行解析モデルを開発するとともに、決定論的な手法と確率論的な手法を相互に補完的に用いることにより、不確実性評価の信頼性と効率を向上させることができる見通しを得た。感度分析技術については、従来の重回帰分析に加えて、クラスタ分析、判別分析、決定木分析などの手法を、分析の目的に応じて使い分けること、および組み合わせる使用の有効性を提示した。モデルの不確実性の影響の定量化については、第 2 次取りまとめの段階で、簡略化したり、安全側の観点からあえて効果を無視していたプロセスの検討として、掘削影響領域での移行遅延や、ガラス溶解に対するガラスの割れの影響について評価を行い、これらの現象の現実的評価がシステム性能の頑健性を示す上で有効となる見通しが得られた。

技術情報の統合技術については、広範囲におよぶ地層処分の各研究要素間で技術情報の共有化を図ることにより、調査・設計・安全評価の整合性を確保し、評価の信頼性の向上を図るため、技術情報を利用しやすい形で統合的に管理することが可能なシステム（技術情報統合システム：JGIS）を構築した。

安全評価手法の適用性確認

実際の地質環境を対象とした、地質環境の調査・評価から物質移行解析に至る一連の作業の枠組みを整理した。また、実際の地質環境を対象とした物質移行解析の大きな特徴のひとつである、地下水流動解析から得られる移行経路情報を物質移行モデルに反映する方法について検討し、複雑なモデルと簡略化したモデルを構築するとともに、簡略化したモデルで複雑なモデルを近似する手法を提示した。

安全評価手法を個別に深地層の研究施設計画や海外の地下研究施設における実際の地質環境データに対して適用した結果、実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題について以下の事項を提示した。

地下水流動評価のうち、補完モデルとしての入れ子式モデルについては、適用結果と亀裂ネットワークモデルを構築する上での留意点・課題として、流体検層による水みちの透水量係数の測定精度の検討、亀裂の長さを設定する際のフラクタル特性データの活用などを示した。実測されたデータから水理パラメータを推定する手法については、幌延の深地層の研究施設計画のボーリング孔で観測された間隙水圧から地下深部の透水係数の推定を行い、留意点として、断層部分の透水係数の設定（高透水性部と低透水性部からなるサンドイッチ構造、あるいは低透水性部のみの一層構造）が地層の透水係数の推定値に影響を与えることを示した。水理地質構造モデルの信頼性を確認する上で、地下水水質変化との整合性を確認する手法については、留意点として、地下水水質の初期状態の把握とその後の変動の把握が重要であることなどを示した。堆積岩の地質構造を推定する技術の開発については、堆積プロセスおよび圧密プロセスを考慮して堆積岩の堆積構造を推定するうえでの留意点として、入力パラメータの設定にあたって、初期条件や堆積作用に影響する要因について堆積学的知見に基づき慎重な検討を行う必要があることを示した。

地下水水質の設定については、地下水水質を熱力学的解析に基づき補正する手法を検討し、留意点・課題として、地下水水質を推定するうえでの鉱物情報の取得の重要性や微生物影響などを含めた評価の必要性について述べた。

物質移行のための解析モデルの選定およびパラメータ設定に関しては、間隙率の異なる新第三紀堆積岩における卓越した水みちとして、亀裂の重要性が異なることが示唆されたことから、実際のサイトにおいて亀裂が岩石の透水性に与える影響を確認することを留意点として示すとともに、原位置での亀裂の連結性についても検討する必要性を今後の課題として示した。結晶質岩については、留意点として、トレーサー試験から安全評価に用いる物質移行パラメータを解釈する際には、亀裂中の充填物質への拡散が短期的には卓越するため、その影響を考慮した解釈を行う必要性を示した。

分配係数の設定に際しては、留意点として、岩石と地下水水質の把握が重要であり、特に後者については天然有機物の把握が重要であることを指摘した。また、実際の地質環境を対象とする際には、得られるデータが限られる可能性があり、そのような場合に既存の収着データベースを基に分配係数を推定する手法を示した。

コロイド、有機物の影響評価を行う際には、留意点として、地下水中における濃度、安定性、移行性、核種収着性・錯形成能およびそれらの不可逆性の 5 つの特性を評価する必要があること、地下水中のコロイド特性は地下水流速や Eh, pH などの影響を受けやすいため、できるだけ地下深部の環境を乱さずに地下水を採取する必要があること、また、有機物についても、コロイドレベルの大きさを持つ有機物が存在する可能性があるため、コロイドと同様に擾乱の小さい手法で地下水を採取する必要があることを述べた。

シナリオ解析については、留意点として、地質環境に対する理解が十分でない段階においては、地質環境条件などを一義的に定めることができないことが想定されるため、そのような場合には複数の地質環境条件のそれぞれに対してシナリオを設定し、不確実性として評価

できるようにしておく必要性と、このような課題に対応可能なシナリオ構築手法を整備したことを述べた。

不確実性評価については、パラメータ分布の設定技術、データ不確実性の影響の評価技術、重要な不確実性の抽出技術が整備され、今後実際の調査・研究にフィードバックすることが課題であることを述べた。

生物圏評価については、調査により得られる情報に応じて GBI 候補を絞り込むことの手順について検討を行い、今後深地層の研究施設計画で行われる調査を活用して検討することが今後の課題であることを述べた。

技術情報統合システムの開発については、実際の地質環境を対象とした調査・研究の進展に伴う技術的な情報の増大や複雑化への対応の実績の蓄積を図ることが課題であることを述べた。

今後に向けて

今後、地層処分のセーフティケースの作成に必要な地質環境の調査、処分場の設計および安全評価に関するデータや情報、および専門家の判断根拠などを知識という形でわが国共通の資源とするために、安全評価に関する技術基盤の強化を進めるとともに、知識の拡充と具体化、統合化の方法論の開発およびそれに基づく知識ベースの構築を進める。

安全評価に関する技術基盤の強化については、地層処分基盤研究施設や地層処分放射化学研究施設などの研究施設において、核種移行などに関するデータの拡充、現象理解の深化に基づくモデルの高度化を図る。また、安全評価への反映の筋道を明らかにしながら個別研究課題を進めるとともに、それらの連携を強化し、総合技術としての安全評価技術を向上させる。さらに、これらの技術の開発・整備に、深地層の研究施設計画で得られる地質環境データなどを活用していくとともに、全体システムモデルの整備も図りながら、個別の技術のみならず安全評価技術全体としての深部地質環境での適用性確認を行う。

知識の統合化に関する方法論の開発および知識ベースを管理する知識マネジメントシステムの開発と整合をとりつつ、上述のデータ、モデル、手法、それらの適用性などの安全評価に関する技術的成果、および深地層の科学研究の成果やすでに開発を進めている熱力学データベースなどを知識として整理し、それらを知識ベースとして体系化する。これにより、事業の進展に応じて研究開発成果や科学技術的進歩を反映した最新の知識を提供することを可能とする。また、関係機関の研究開発成果もこの知識ベースに統合し、地層処分技術に関する研究開発における中核機関としての役割を果たす。

目 次

1.	はじめに	1-1
1.1	第2次取りまとめ以降の研究開発方針	1-1
1.2	サイクル機構の研究開発計画	1-2
1.2.1	全体計画の作成	1-2
1.2.2	全体計画に沿った研究開発の実施	1-3
1.3	H17取りまとめの位置づけと構成	1-5
1.4	安全評価手法の高度化に関する研究の課題と進め方	1-6
1.4.1	研究課題の設定	1-7
1.4.2	研究の進め方	1-10
1.5	本報告書の構成と内容	1-11
	参考文献	1-12
2.	核種移行データベースの整備	2-1
2.1	放射性元素の熱力学データベースの整備	2-1
2.2	収着・拡散データベースの整備	2-15
	参考文献	2-23
3.	安全評価モデルの高度化	3-1
3.1	岩盤中水理・物質移行モデルの高度化	3-2
3.1.1	地上からの調査段階における地下水流動評価手法の整備	3-3
3.1.1.1	亀裂ネットワークモデルの高度化	3-3
3.1.1.2	実測された間隙水圧データによる水理地質構造の推定	3-8
3.1.1.3	地下水水質変化を考慮した水理地質構造モデルの信頼性向上	3-11
3.1.1.4	堆積プロセスを考慮した地質構造推定技術の開発	3-15
3.1.1.5	地下水流動解析結果の不確実性定量化技術の開発	3-21
3.1.2	亀裂を対象とした水理・物質移行現象の理解	3-26
3.1.2.1	天然亀裂を対象とした水理・物質移行特性データの取得	3-27
3.1.2.2	不均質な開口幅分布が水理・物質移行特性に与える影響検討のための 基盤技術の整備	3-30
3.1.2.3	亀裂内充填物質や透水量係数などの不均質性が水理・物質移行に 及ぼす影響の検討	3-37
3.1.2.4	原位置トレーサー試験より得られる水理・物質移行特性値の 不確実性評価	3-51
3.1.3	堆積岩中の水理・物質移行現象の理解	3-55
3.2	地下水・間隙水水質形成モデルの高度化	3-62
3.3	現象論的核種移行モデルの開発	3-72
3.3.1	ガラスの長期浸出挙動に関する研究	3-72
3.3.2	核種の溶解現象に関する研究	3-83

3.3.3	核種の収着・拡散現象に関する研究	3-87
3.4	コロイド，有機物，微生物の影響評価モデルの開発	3-102
3.4.1	コロイドの影響評価モデルの開発	3-102
3.4.2	天然有機物・微生物の影響評価モデルの開発	3-114
3.5	生物圏評価モデルの高度化	3-125
	参考文献	3-136
4.	安全評価手法の整備・高度化	4-1
4.1	シナリオに関する技術の高度化	4-1
4.1.1	シナリオ解析技術の高度化	4-1
4.1.2	天然現象影響評価技術の高度化	4-9
4.2	不確実性評価技術の高度化	4-23
4.2.1	パラメータの分布設定技術の高度化	4-25
4.2.2	データ不確実性の影響評価技術の高度化	4-31
4.2.3	モデル不確実性の影響評価技術の高度化	4-41
4.3	技術情報の統合技術	4-50
	参考文献	4-59
5.	安全評価手法の適用性確認	5-1
	参考文献	5-23
6.	おわりに	6-1
6.1	成果のまとめと反映内容	6-1
6.1.1	核種移行データベースの整備	6-1
6.1.2	安全評価モデルの高度化	6-2
6.1.3	安全評価手法の整備・高度化	6-5
6.1.4	安全評価手法の適用性確認	6-6
6.2	今後の課題	6-8
付録表	第2次取りまとめ以降の進捗	付-1(1)
	用語の説明	付-2(1)
	略語の説明	付-3(1)

目 次

図 1.2-1	全体計画の 2 つの研究開発目標に基づき展開される研究開発項目	1-3
図 1.3-1	H17 取りまとめのレポート構成	1-6
図 1.4-1	安全評価の全分野と H17 取りまとめの安全評価手法の高度化で カバーする範囲	1-7
図 1.4-2	安全評価手法の高度化に関する研究開発の目標と個別研究開発 課題の関係	1-9
図 1.4-3	安全評価手法の高度化に関する研究の進め方	1-11
図 2.1-1	アルカリ性水溶液中における Np(IV)溶解度の全炭酸濃度依存性	2-4
図 2.1-2	炭酸共存下での Np(IV)の溶解度の pH_c 依存性	2-4
図 2.1-3	アクチニド IV 価イオンのイオン半径と含水酸化物の溶解度積の関係 (第 2 次取りまとめ時点)	2-6
図 2.1-4	Np(IV)溶解度の pH_c 依存性	2-7
図 2.1-5	アクチニド IV 価イオンのイオン半径と含水酸化物の溶解度積の関係	2-8
図 2.1-6	U(IV)の分配比と pH_c の依存性	2-9
図 2.1-7	U(IV)含水酸化物の強アルカリ領域での溶解度	2-10
図 2.1-8	イオン強度に対する Am の溶解度計算結果の活係数補正方法依存性	2-11
図 2.1-9	サイクル機構 熱力学・収着データベース外部公開ホームページ 初期画面	2-12
図 2.1-10	サイクル機構 熱力学データベースシステムの利用例	2-13
図 2.2-1	更新前後での分配係数データのヒストグラムの比較例	2-17
図 2.2-2	Cs の砂質岩に対する Kd のイオン強度依存性	2-17
図 2.2-3	Am の結晶質岩 (酸性) に対する Kd の pH 依存性	2-17
図 2.2-4	更新前後での JNC-SDB による分配係数データのヒストグラムと 第 2 次取りまとめにおける Kd 設定値との関係	2-18
図 2.2-5	JNC-SDB の更新前後でのデータ充足状況の変化	2-18
図 2.2-6	データ相互間の整合性の観点に基づく Kd の信頼度評価の一例	2-20
図 2.2-7	JNC-SDB Web システム	2-21
図 3.1.1-1	地表面、被覆堆積岩と基盤岩の不整合面および断層面の曲面構造の モデル化例	3-4
図 3.1.1-2	被覆堆積岩の連続体要素と断層モデル	3-4
図 3.1.1-3	連続体モデルと亀裂ネットワークモデルを入れ子式にモデル化した 概念図	3-5
図 3.1.1-4	亀裂ネットワークモデルと連続体モデルの接合部概念図	3-5
図 3.1.1-5	連続体モデルと亀裂ネットワークモデルを入れ子式にモデル化した例	3-6
図 3.1.1-6	瑞浪の深地層の研究施設計画などで取得されたデータを用いた 地下水流動解析例	3-6

図 3.1.1-7	解析対象とした幌延地域の地質構造モデル	3-8
図 3.1.1-8	各ボーリング孔での全水頭分布	3-9
図 3.1.1-9	本研究のモデル化領域と断層の分布概念図	3-11
図 3.1.1-10	ケモメトリックス法による解析手順	3-12
図 3.1.1-11	KA3005A 孔における端成分混合割合の実測値と計算値の比較例	3-13
図 3.1.1-12	KAS07 孔における端成分混合割合の実測値と計算値の比較例	3-13
図 3.1.1-13	KAS07 孔における物質移行開口幅 a_T 補正後の端成分混合割合の 実測値と計算値の比較例	3-13
図 3.1.1-14	自然 γ 線検層結果と試料採取深度 (HDB-1 孔)	3-16
図 3.1.1-15	蛍光 X 線全岩化学組成分析結果	3-17
図 3.1.1-16	水銀圧入ポロシメーターによる珪藻質泥岩の細孔径分布測定結果	3-17
図 3.1.1-17	堆積物と堆積プロセスの概念図	3-19
図 3.1.1-18	圧密プロセスの概念図	3-19
図 3.1.1-19	ソフトウェアの出力情報の 3 次元表示例	3-20
図 3.1.1-20	水理地質構造のモデル化に介在する不確実性と地下水流動評価の流れ	3-22
図 3.1.1-21	任意点からの移行到達点の予測範囲概念図	3-23
図 3.1.1-22	透水係数分布 (期待値) の推定結果とその変動係数分布	3-23
図 3.1.1-23	移行到達点の不確実性の定量的評価結果例	3-24
図 3.1.1-24	本手法とモンテカルロ法の到達点期待値の差	3-24
図 3.1.1-25	確率有限要素法と本手法を用いた解析時間とモンテカルロ法による 解析時間の比較例	3-25
図 3.1.2-1	LABROCK 試験岩体の模式図	3-27
図 3.1.2-2	LABROCK 試験岩体の水理学的開口幅 (bh) と 物質移行開口幅 (bt) の関係	3-28
図 3.1.2-3	NETBLOCK 用試験体の概要図	3-29
図 3.1.2-4	亀裂に沿った方向の透水量係数測定結果	3-29
図 3.1.2-5	単一亀裂を対象とした研究のフロー	3-30
図 3.1.2-6	単一亀裂を対象としたトレーサー試験技術	3-31
図 3.1.2-7	様々な開口幅測定手法の模式図	3-32
図 3.1.2-8	3 種類の開口幅測定手法による開口幅測定結果の比較	3-33
図 3.1.2-9	LGA 法の基本概念図	3-33
図 3.1.2-10	平行平板モデル解析ケースの概要図	3-34
図 3.1.2-11	平行平板中の流速分布形状の比較	3-34
図 3.1.2-12	研削による開口幅データと LGA 法に用いる開口幅モデルの比較	3-35
図 3.1.2-13	LGA 法による解析結果	3-35
図 3.1.2-14	拡散試験の流れ	3-38
図 3.1.2-15	拡散試験に用いた試験岩体のサンプル	3-38
図 3.1.2-16	ガウジで充填されている亀裂中の間隙率分布と濃度分布の時間変化	3-39
図 3.1.2-17	亀裂性岩盤中の各領域における間隙水中の拡散係数	3-39
図 3.1.2-18	従来の亀裂内部構造の概念モデルと代替モデル	3-40

図 3.1.2-19	亀裂の透水性（固有透過係数）を変化させた解析ケース	3-40
図 3.1.2-20	亀裂の透水性（固有透過係数）を変化させた場合の解析結果	3-41
図 3.1.2-21	矩形の澱み域を考慮した解析モデル	3-42
図 3.1.2-22	澱み域の深さと幅をパラメータとした時の破過曲線の解析結果	3-42
図 3.1.2-23	亀裂の内部構造の概念モデル	3-43
図 3.1.2-24	発生させた透水量係数分布と流線	3-44
図 3.1.2-25	トレーサー試験結果とキャリブレーション後の解析結果	3-46
図 3.1.2-26	Feature A を貫通する STT-1b トレーサー試験のボーリング孔配置	3-47
図 3.1.2-27	タスク 6A の解析結果例（Sr-85 に対するキャリブレーション後の破過曲線）	3-47
図 3.1.2-28	タスク 6B の解析結果例	3-48
図 3.1.2-29	タスク 6B2 の境界条件	3-49
図 3.1.2-30	タスク 6B2 の解析結果例	3-49
図 3.1.2-31	パラメータ信頼区間の模式図	3-52
図 3.1.2-32	HTO トレーサー試験結果とその解析結果	3-53
図 3.1.2-33	移行経路モデルの概念図	3-53
図 3.1.2-34	1 経路モデルで得られた実流速と分散長の 95 %信頼区間楕円	3-54
図 3.1.3-1	インタクト試料での透水試験結果一覧	3-56
図 3.1.3-2	亀裂試料での封圧と透水量係数の関係（稚内層）	3-57
図 3.1.3-3	インタクト試料での拡散試験	3-57
図 3.1.3-4	実効拡散係数と有効間隙率の関係	3-58
図 3.1.3-5	トレーサー試験結果	3-59
図 3.1.3-6	分散長と試験スケールの関係	3-60
図 3.1.3-7	透水量係数と物質移行開口幅の関係	3-60
図 3.2-1	方解石の飽和指数計算結果	3-64
図 3.2-2	間隙水 pH プロファイルの測定結果	3-67
図 3.2-3	コア中の硫酸イオン含有量およびベントナイト懸濁液の pH と河床からの深度との関係	3-68
図 3.2-4	JNC-TDB.TRU の開発フロー	3-70
図 3.3.1-1	ガラスの鉍物化の様子	3-73
図 3.3.1-2	ベントナイト共存の有無におけるガラスからの B と Cs の浸出試験結果	3-74
図 3.3.1-3	水和変質モデルの概略	3-74
図 3.3.1-4	水和変質モデルによるガラス固化体長期浸出挙動の評価結果	3-79
図 3.3.1-5	偏光顕微鏡像	3-81
図 3.3.2-1	90 °Cにおける $\text{UO}_2(\text{am})$ の溶解挙動	3-84
図 3.3.2-2	方解石沈殿速度と元素分配比	3-85
図 3.3.2-3	実験結果と理想的な固溶体を仮定した計算結果との比較	3-86
図 3.3.3-1	炭酸共存下におけるスメクタイトに対する N_p の分配係数の全炭酸濃度(C_T)依存性とその解析結果	3-89

図 3.3.3-2	幌延地域の堆積岩に対する Cs の Kd	3-91
図 3.3.3-3	陰イオンの拡散における保持因子 α の NaNO ₃ 濃度依存性	3-93
図 3.3.3-4	MD-HA 解析のための 2 次元間隙構造モデル	3-95
図 3.3.3-5	MD 計算によるスメクタイト層間の水の自己拡散係数分布	3-95
図 3.3.3-6	MD-HA 結合解析による圧縮ベントナイト中の水の拡散係数と 実測値の比較	3-96
図 3.3.3-7	凝灰岩に対する陰イオンの実効拡散係数の NaNO ₃ 濃度依存性	3-97
図 3.3.3-8	花崗岩に対する Cs ⁺ および I ⁻ の実効拡散係数の NaCl 濃度依存性	3-97
図 3.4.1-1	コロイド影響が顕在化する条件の考え方	3-102
図 3.4.1-2	ベントナイト間隙推定のための均質化モデルの概要図	3-104
図 3.4.1-3	ベントナイトとコロイド間の粒子間ポテンシャル	3-105
図 3.4.1-4	ベントナイト鉱床の地下水中のコロイド濃度, pH およびイオン濃度	3-106
図 3.4.1-5	地下水中のコロイド成分濃度の測定結果の一例	3-107
図 3.4.1-6	Am の地下水コロイドへの分配係数	3-107
図 3.4.1-7	ベントナイトコロイドへの Cs 分配係数	3-107
図 3.4.1-8	脱着試験後のベントナイトコロイドへの Cs 分配係数	3-108
図 3.4.1-9	ベントナイトコロイドの結晶断面の TEM 写真	3-108
図 3.4.1-10	粘土系コロイド共存下での核種の亀裂中移行実験の結果と解析結果	3-110
図 3.4.1-11	フィールド実験に関する核種移行解析結果の一例	3-110
図 3.4.1-12	地下水流速 50 m y ⁻¹ の場合のコロイド共存系での Am(III) 移行解析結果	3-111
図 3.4.1-13	地下水流速 500 m y ⁻¹ の場合のコロイド共存系での Am(III) 移行解析結果	3-111
図 3.4.2-1	圧縮ベントナイトからのポリアクリル酸 (分子量 15,000) の破過曲線	3-117
図 3.4.2-2	溶液中 Th 濃度に及ぼすフミン酸濃度の影響	3-118
図 3.4.2-3	溶液中 Th 濃度に及ぼす炭酸の影響	3-119
図 3.4.2-4	溶液中 Np 濃度に及ぼすフミン酸濃度の影響	3-119
図 3.4.2-5	pH を強酸性 (0 以下) に調整した際に溶液中に存在する Np の割合	3-120
図 3.4.2-6	微生物への吸着を考慮した岩盤中の Am の移行率 (核種濃度比)	3-122
図 3.5-1	地表環境での物質移行と被ばく経路の概念モデル	3-130
図 3.5-2	モンテカルロシミュレーションの結果に対する感度分析の結果例 (Cs-135)	3-131
図 3.5-3	第 2 次取りまとめ生物圏評価で用いたパラメータの設定状況の 整理結果の例	3-132
図 3.5-4	天然放射性核種のフラックスの算出方法において考慮した場, 物質および物質移動プロセスの体系	3-133
図 4.1.1-1	シナリオ解析の作業プロセス	4-2
図 4.1.1-2	相関関係のマトリクス形式での整理のイメージ	4-3
図 4.1.1-3	相関関係マトリクスの階層的な構造のイメージ	4-5

図 4.1.1-4	相関関係マトリクスと階層化による相関関係の整理の例	4-7
図 4.1.2-1	天然現象の発生から処分環境・システム性能への影響の 整理作業イメージ	4-11
図 4.1.2-2	天然現象影響評価の作業手順	4-12
図 4.1.2-3	Step1 での天然現象のプロセスに関する知見・情報の収集・整理の 作業例（火山活動の例）	4-13
図 4.1.2-4	Step2 での地質環境条件の変化に関する知見・データの収集・整理の 作業例（火山活動の例）	4-14
図 4.1.2-5	模式的な現象からの距離と地質環境条件の変化の程度との関係	4-17
図 4.1.2-6	Step3 での地質環境条件の変化に基づく影響領域の区分のイメージ	4-18
図 4.1.2-7	「類型化」への考え方の例	4-19
図 4.1.2-8	Step4 でのモデル・解析条件の設定作業のイメージ	4-20
図 4.2.1-1	設定手法②（主に統計的な処理を重視した設定手法）のフロー	4-26
図 4.2.1-2	パラメータの分布設定に係る情報の体系	4-29
図 4.2.2-1	GoldSim を用いた核種移行解析モデルの画面上のイメージ	4-32
図 4.2.2-2	モンテカルロシミュレーションから得られた総線量の最大値の散布図	4-33
図 4.2.2-3	感度分析の基本的な方針の整理例	4-35
図 4.2.2-4	モンテカルロシミュレーションから得られた 総線量の最大値に対するクラスタ分析の結果	4-36
図 4.2.2-5	決定木分析で考慮するカテゴリーとその範囲の例（ケース 1）	4-38
図 4.2.2-6	決定木分析の結果得られる決定木の例（ケース 1）	4-38
図 4.2.2-7	決定木分析の結果得られる重要パラメータの定量的条件と 判別結果の関係の整理の例（ケース 1）	4-38
図 4.2.3-1	人工バリア中核種移行解析モデルの概念図	4-42
図 4.2.3-2	2次元人工バリア中核種移行モデルの幾何形状	4-43
図 4.2.3-3	2次元人工バリア中核種移行モデルの概念図（緩衝材部分の2次元化）	4-44
図 4.2.3-4	2次元人工バリア中核種移行モデルの概念図 （緩衝材部分と掘削影響領域部分の2次元化）	4-44
図 4.2.3-5	掘削影響領域からの移行率の経時変化（Pu-239）	4-45
図 4.2.3-6	掘削影響領域からの移行率の経時変化（Cs-135）	4-45
図 4.2.3-7	2次元人工バリア中核種移行モデル（緩衝材と掘削影響領域の2次元化） による Cs-135 の移行率が最大となる時間での各地点における フラックス	4-45
図 4.2.3-8	実規模模擬ガラス固化体と断面図	4-47
図 4.2.3-9	ガラス固化体の割れが溶解に与える影響を評価するための概念モデル	4-47
図 4.3-1	技術的な情報の取扱いに関する3つの問題点に対するアプローチと 対応するシステム機能	4-52
図 4.3-2	技術情報統合システム（JGIS）の全体像	4-52
図 4.3-3	技術的な情報を集約・統合する体系化の考え方の例	4-54
図 4.3-4	計画の中での研究要素間の関係のイメージ	4-54

図 4.3-5	研究成果とともに一括して管理する情報	4-55
図 5-1	第 2 次取りまとめにおいて適用したわが国における幅広い地質環境を 対象とした評価手法と実際の地質環境を対象とした検討の項目	5-3
図 5-2	地質環境モデルの作成から物質移行解析までの一連の作業に係わる 概略の作業フロー	5-13
図 5-3	地質構造モデルの例	5-15
図 5-4	水理地質構造モデル（3 次元的な透水性分布）の例	5-15
図 5-5	物質移行解析で取り扱う移行経路のイメージ	5-17
図 5-6	物質移行解析で用いたパラメータ	5-20
図 5-7	複雑なモデルと簡略化したモデルの物質移行解析結果の比較の例 （Cs-135）	5-20

表 目 次

表2.1-1	溶解度試験から得られたNp(IV)ヒドロキソ炭酸錯体の安定度定数 $\beta_{n,m}^0$ ……	2-5
表2.1-2	溶解度試験から得られたNp(IV)含水酸化物の溶解度積 ……	2-7
表2.1-3	U(IV)の加水分解定数 ……	2-10
表2.2-1	更新した19元素に対する更新後のJNC-SDB内のデータ数 ……	2-16
表3.1.1-1	設定した透水係数 ……	3-9
表3.1.1-2	透水係数推定結果 ……	3-9
表3.1.1-3	端成分の組成 ……	3-12
表3.1.1-4	珪藻含有量と中央細孔径値・間隙率・比表面積の関係 ……	3-18
表3.1.2-1	キャリブレーション前後のパラメータ値 ……	3-45
表3.1.2-2	透水量係数の不均質場とパラメータ ……	3-49
表3.1.2-3	同定したパラメータ値と95 %信頼区間 ……	3-54
表3.1.3-1	室内試験内容 ……	3-55
表3.1.3-2	亀裂試料での透水試験結果一覧 ……	3-56
表3.1.3-3	拡散試験結果一覧 ……	3-58
表3.1.3-4	トレーサー試験解析結果一覧 ……	3-59
表3.2-1	HDB-6孔における深度450 mでの地下水水質推定値 ……	3-66
表3.2-2	Mattigod and McGrail (1999) の手法により導出された沸石類の ギブス生成自由エネルギーの値 ……	3-69
表3.3.1-1	生成鉱物とガラス浸出速度 (Bに基づく浸出速度) の関係 ……	3-73
表3.3.1-2	変質後ガラスからのCsの脱離試験条件 ……	3-76
表3.3.1-3	試料採取地点周囲の地下水の分析値 ……	3-80
表3.3.1-4	ボーリングコア試料の鉱物組成 ……	3-81
表3.3.3-1	最小二乗法によって得られた溶存化学種ごとの分配係数 Kd_i の一覧 ……	3-89
表3.4.2-1	茂原ガス田で採取された地下水中の有機物濃度 ……	3-116
表3.4.2-2	核種と腐植物質との相互作用モデルの比較 ……	3-121
表3.4.2-3	核種移行に及ぼす微生物の影響に関する分類 ……	3-122
表3.5-1	地質環境の特徴と設定した仮想的な環境パターンとの対応 ……	3-127
表3.5-2	仮想的な環境パターンの設定結果とGBI候補の検討結果 ……	3-128
表3.5-3	生物圏評価パラメータの設定状況の整理の観点 (信頼性, 属性の分類) ……	3-131
表4.1.2-1	Step1～3の作業結果の表による取りまとめのイメージ (火山活動の例) ……	4-16
表4.2.1-1	設定手法① (主に専門家の主観的な判断を重視した設定手法) の特徴 ……	4-26
表4.2.1-2	誘出法の手順および誘出法に基づき具体化した作業内容 ……	4-28
表4.2.2-1	モンテカルロシミュレーションで考慮するパラメータとその分布 ……	4-33
表4.2.2-2	クラスタ分析と重回帰分析を組み合わせた複合的な手法による 感度分析の結果 ……	4-36
表5-1	物質移行解析で用いるパラメータ ……	5-18

1. はじめに

1.1 第2次取りまとめ以降の研究開発

わが国においては、資源の有効利用の観点から原子炉から取り出された使用済み燃料を再処理し、ウランやプルトニウムを回収した後に発生する高レベル放射性廃棄物対策として、これをガラス固化し冷却のための貯蔵を経て深部の安定な地層に処分（地層処分）するとの方針の下、技術的可能性について幅広い地質環境を対象として研究開発が進められてきた（原子力委員会、1976 など）。

核燃料サイクル開発機構（以下、「サイクル機構」という）は前身である動力炉・核燃料開発事業団（以下、「動燃事業団」という）以来、中核的研究開発機関として、2つの技術報告書（動力炉・核燃料開発事業団、1992；核燃料サイクル開発機構、1999）をまとめ、わが国においても高レベル放射性廃棄物の地層処分が技術的に可能であることを示した。特に、1999年に公表した技術報告書「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—」（以下、「第2次取りまとめ」という）を技術的な基盤として、2000年6月には「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」（平成12年、法律第117号）（以下、「最終処分法」という）が公布され、また、安全規制の策定に関する議論が進められてきている（原子力安全委員会、2000、2004；総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会廃棄物安全小委員会、2003）。

最終処分法は、高レベル放射性廃棄物の最終処分を計画的かつ確実に実施することを目的として制定され、処分実施主体の設立、最終処分費用の確保・拠出制度の確立、3段階の処分地選定プロセス（文献調査に基づく概要調査地区の選定、ボーリング調査など地上からの調査に基づく精密調査地区の選定、地上および地下での詳細な調査に基づく最終処分施設建設地の選定）等をその主要な内容としている。最終処分法に従い2000年10月に実施主体である原子力発電環境整備機構（以下、「原環機構」という）が設立された。

最終処分法に基づき、「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」（通商産業省、2000a）（以下、「基本方針」という）と「特定放射性廃棄物の最終処分に関する計画」（通商産業省、2000b）が示された。このうち、基本方針には、事業段階における研究開発について、実施主体や国および関係機関の役割が述べられている。処分の安全な実施、経済性や効率性の向上等を目的とする技術開発は実施主体が担い、国とその関係機関は、最終処分の安全規制、安全評価のために必要な研究開発や深地層の科学的研究等の基盤的な研究開発及び地層処分技術の信頼性の向上に関する技術開発等を積極的に進めていくことが必要であるとされている。「原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画（平成12年）」（原子力委員会、2000）（以下、「原子力長計」という）においても、基本方針を踏襲して関係機関の役割が示され、特に、サイクル機構等は、これまでの研究開発成果に基づき、深地層の研究施設、地層処分放射化学研究施設（QUALITY）等を活用し、今後とも地層処分技術の信頼性の確認や安全評価手法の確立に向けて研究開発を着実に推進することが必要であるとされた。

さらに、総合資源エネルギー調査会原子力部会は、原子力長計を具体化するための検討を行い、「原子力の技術基盤の確保について」（総合資源エネルギー調査会原子力部会、2001）（以下、「原子力部会報告書」という）の中で、サイクル機構は、これまでの研究開発成果を踏まえ、今後ともその研究開発施設等を活用し、深地層の科学的研究、実測データの着実な蓄積とモデル高度化による地層処分技術の信頼性向上と安全評価手法の高度化に向けて研究開発を着実に推進することを求めている。

以上のように、第2次取りまとめまで、わが国全体の研究開発を集約してきたサイクル機構は、第2次取りまとめ以降の新たな研究開発の枠組みの中で、それまでの研究開発の経験や充実した研究施設を活かし、地層処分技術の信頼性の確認や安全評価手法の確立に焦点を

あてた研究開発を進めるという役割を与えられてきた。

2005年10月に、サイクル機構は日本原子力研究所との統合により日本原子力研究開発機構となる。「原子力二法人の統合に関する報告書」（文部科学省原子力二法人統合準備会議、2003）において、新法人は、わが国における地層処分技術に関する研究開発の中核的役割を担うことが期待されており、事業と規制の両面を支えるわが国全体としての技術基盤を構築していくことが求められるといえる。

1.2 サイクル機構の研究開発計画

第2次取りまとめ以降の役割に沿った研究開発を効率的かつ効果的に進めるため、サイクル機構では「国の研究開発全般に共通する評価の実施方法の在り方についての大綱的指針」（内閣総理大臣、1997）に沿って、取り組んでいる研究開発課題についての外部評価を実施するため研究開発課題評価委員会を設置し、その評価を受けて研究開発計画を作成している。

1.2.1 現在の全体計画

現在の研究開発計画は、2001年に「高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の全体計画」（以下、「全体計画」という）として作成されたものである（核燃料サイクル開発機構研究開発課題評価委員会（廃棄物処理処分課題評価委員会）、2001）。処分事業のスケジュールなどを勘案し長期的視点を念頭に置きつつ、5年程度の研究開発計画を作成し適宜見直しを行うものとしている。これらの研究開発を進めるにあたっては、処分事業や安全規制の双方へ基盤的な情報を反映していくという観点から、課題評価委員会の評価結果に示されたように独立性、主体性をもって進めていくことに留意している

全体計画では、上記基本方針や原子力長計、原子力部会報告書で示されたサイクル機構の役割を果たすため、国による第2次取りまとめの評価で示された技術開発課題（原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会、2000）や安全規制の基本的考え方に示された検討項目（原子力安全委員会、2000）を勘案し、図1.2-1に示すように、「実際の地質環境への地層処分技術の適用性確認」と「地層処分システムの長期挙動の理解」という2つの目標を設定した。前者については、深地層の研究施設における各調査研究段階で、地質環境の調査・評価技術、地下施設の建設・維持等に関わる工学技術、実際の地質環境情報に基づく設計・安全評価手法それぞれの適用性を確認することとした。一方、後者については、事例研究や深地層の研究施設及びナチュラルアナログを利用した地質環境の長期的変遷の理解、地層処分基盤研究施設（ENTRY）やQUALITYを中心とした設計や安全評価に関するデータの蓄積と現象理解によるモデルの高度化、およびシステムの挙動をより現実的に評価し理解を深めるための総合的予測・評価手法の整備・高度化を行うこととしている。

この2つの目標を達成するために展開される研究開発項目を、従来からの研究開発の枠組みを勘案し新たに設定した「深地層の科学的研究」、「処分技術の信頼性向上」、「安全評価手法の高度化」という3つの分野における研究開発課題として明らかにしている。

「深地層の科学的研究」の分野には、岐阜県瑞浪市及び北海道幌延町における2つの深地層の研究施設計画で進められている研究開発、日本全国を対象とした事例研究、諸外国の研究機関との共同研究などが含まれている。これらによって、実際の地質環境を対象とした調査技術や評価手法、情報の統合に関する技術的実証や、地下施設を建設し維持・管理するうえで必要となる安全で実際的な工学技術の検討が行われてきた。また、地層処分システムの長期挙動を理解するうえで、変動帯に位置するわが国においては特に重要である地質環境の長期安定性に関する研究を継続するとともに、ウラン鉱床を利用したナチュラルアナログ研究を実施している。2つの深地層の研究施設については別途計画を作成し、課題評価委員会

に図るなど適宜評価を受けてきている（核燃料サイクル開発機構研究開発課題評価委員会（廃棄物処理処分課題評価委員会），2000）。2005年度は、深地層の研究施設計画における第1段階（地上からの調査研究段階）から第2段階（坑道掘削時の調査研究段階）への移行期にあたっている。

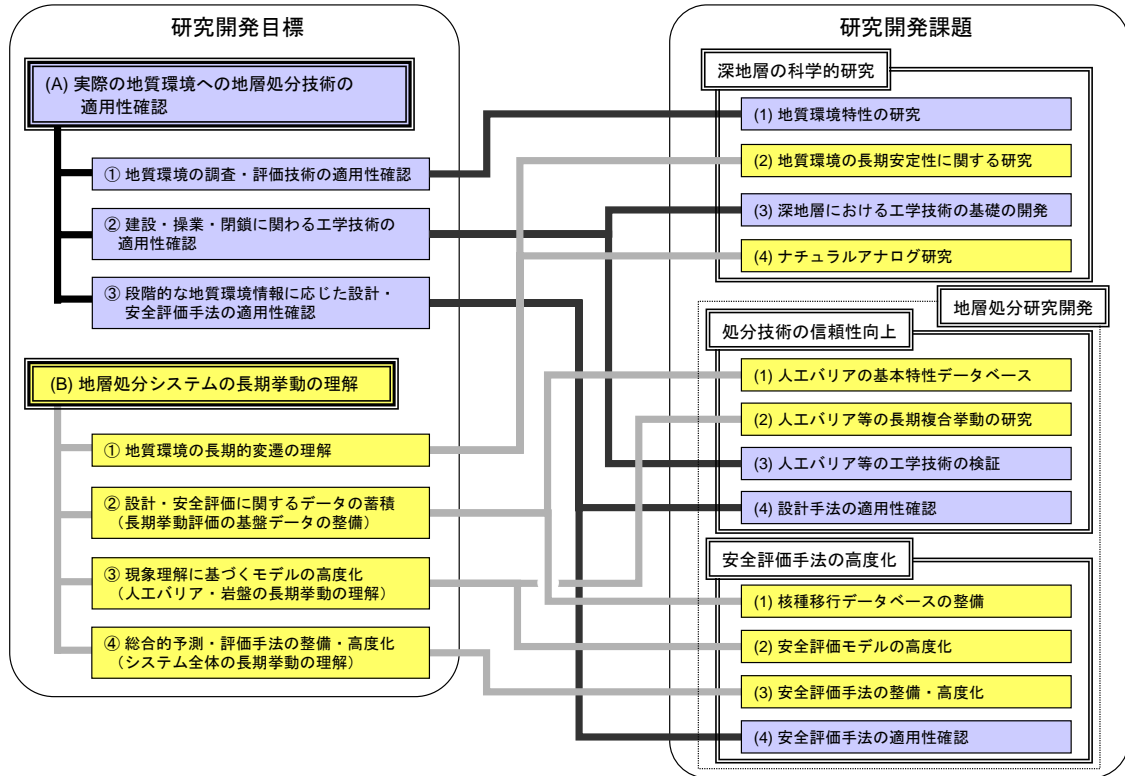


図 1.2-1 全体計画の2つの研究開発目標と研究開発項目の展開

地層処分に関する工学技術（「処分技術の信頼性向上」）に関する分野では、人工バリアと周辺岩盤を含むニアフィールド環境における長期的な個別現象や連成現象など、処分システムの長期性能に関する評価の信頼性向上に焦点を当てて研究を進めてきた。そのため、ENTRYでの工学試験による炭素鋼オーバーパックなどの腐食挙動や緩衝材の基本特性に関するデータベースを整備するとともに、温度、水理、力学、地球化学条件が複雑に変化する処分初期の遷移状態におけるニアフィールドの挙動を評価するために、国際共同研究なども活用して熱-水-応力-化学連成モデルの開発などを進めてきた。また、ナチュラルアナログ研究により、人工バリア材料の長期挙動に関するデータの蓄積と評価手法の妥当性確認を行ってきた。さらに、海外の地下研究施設を活用した閉鎖技術の開発や低アルカリ性セメントの開発、深地層の研究施設における地上からの調査で得られた地質環境情報に基づく設計手法の適用性確認などを進めた。

安全評価に関連する研究開発（「安全評価手法の高度化」）では、第2次取りまとめのような全体システムの解析評価を実施することではなく、将来特定のサイトにおいてこうした評価を行うために必要となるアプローチや、評価ツールとしてのモデル、データベースを開発することに主眼を置いている。このため、安全評価のモデル体系の適用性に関する検討は部分的なものにとどまっている。より注力したのは、サイトの条件に即した処分場の安全性の定量的評価に用いるための方法論やモデル、データベースの開発である。こうした方法論の開発には、火成活動による変動シナリオの作成に伴う不確実性、天然バリア中における核

種移行の定量化に用いる概念モデルやパラメータに伴う不確実性の影響度の検討を挙げることができる。モデルの開発においては、特定の人工バリアや天然バリアの挙動をできるだけ忠実に表現できるようにすることを目標に、実験室やフィールドにおける試験結果を再現するための計算コードの改良を行うことが主眼となっている。データベースに関しては、安全評価において放射性核種の放出や移動を定量化するために用いられるパラメータ（溶解度、系に応じた分配係数など）の決定に必要な元素毎のデータ（熱力学データ、経験的収着係数）の蓄積と評価が主要な研究対象となっている。このようなデータの取得にあたってはQUALITYを利用するとともに経済協力開発機構原子力機関（OECD/NEA）で進められているプロジェクトとの連携を図っている。

1.2.2 研究開発を取り巻く状況

図 1.2-1 に示すように多岐にわたる専門領域を含む研究開発を全体目標に沿って管理するうえで、例えば第 2 次取りまとめで実施されたような成果の集約、統合を行うことが効果的である。第 2 次取りまとめにおいてはこのような統合を、全体システムの安全評価によって実施し、課題の抽出を行っている。サイクル機構における第 2 次取りまとめ以降の研究開発の成果は、図 1.2-1 の右側に示された個々の研究開発分野ごとにまとめ、2001 年度以降、「年報」として公表している（核燃料サイクル開発機構、2002, 2003, 2004）。これらは、第 2 次取りまとめの 3 つの分冊と同様な構造としており、それぞれの分野における進捗と残された課題は比較的容易に明らかにすることができる。

一方、全体計画に沿って第 2 次取りまとめ以降の研究開発を進めていく過程においても、実施主体による計画の推進や安全規制に関する議論、地層処分に関する国際的な議論に進展があった。

原子力安全委員会では、2000 年の安全規制の基本的考え方で示した処分地に要求される環境要件のあり方に基づき、「高レベル放射性廃棄物処分の概要調査地区選定段階で考慮すべき環境要件について」（原子力安全委員会、2002）（以下、「環境要件」という）を取りまとめた。これは、概要調査地区を選定する際に文献調査によって明らかに処分地として不適切な地域を除外するための要件を示したもので、文献調査で十分な評価ができない場合には、概要調査やそれ以降の調査で再評価しなければならない。また、放射線障害防止の観点から、低レベル放射性廃棄物から高レベル放射性廃棄物にわたる放射性廃棄物処分全般についての安全規制を考えていく上で共通する事項を取り上げ、国際的な動向等を参考に入れ、わが国の今後の検討の方向性を示している（原子力安全委員会、2004）。

総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会の下に設置された廃棄物安全小委員会では、高レベル放射性廃棄物処分の安全規制の在り方や安全規制の内容について検討を進め、安全規制の基盤確保についての審議結果を報告書として取りまとめている（総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会廃棄物安全小委員会、2003）。この報告書では、安全規制制度の検討に先立ち、今後調査を進めるべき研究課題と、研究を実施して規制機関を支援する体制についての提言が行われている。

原環機構では、最初のマイルストーンである概要調査地区の選定に向け、2001 年 11 月に処分地選定プロセスの透明性確保と地域との共生の観点から、公募による選定の考え方を示し、概要調査地区等を選定する方法や時期などを含め選定手順の基本的考え方を公表した（原子力発電環境整備機構、2001）。これに基づき、2002 年 12 月に日本全国の市町村を対象に「高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域」の公募が開始された。公募にあたり、市町村の応募に向けた検討資料として、「応募要領」（原子力発電環境整備機構、2002a）、「処分場の概要」（原子力発電環境整備機構、2002b）、「概要調査地区選定上の考慮事項」（原子力発電環境整備機構、2002c）及び「地域共生への取組み」（原子力発電環境整備機構、2002d）が示されている。このうち「概要調査地区選定上の考慮事項」

(原子力発電環境整備機構, 2002c) には, 原子力安全委員会の示した環境要件が反映されている。また, 「処分場の概要」や「概要調査地区選定上の考慮事項」の技術的根拠となる報告書をそれぞれ公開している(原子力発電環境整備機構, 2004a, 2004b; NUMO, 2004a, 2004b)。特に, 今後の事業計画の段階的な進展に応じて, 各段階で得られたサイトの環境条件に関するデータや情報を適切に反映しサイトに適合した処分場概念を開発していくためのアプローチを構築するとともに, その具体的な方法論について検討が行なわれている(原子力発電環境整備機構, 2004a; NUMO, 2004a)。この検討においては, 第2次取りまとめを技術的な基盤とし, 閉鎖後の長期安全性の確保に加え, 実用的な観点からより総合的に評価を行い, 処分場概念の最適化を図っていくことの重要性が示されている。

関係する研究開発機関では, サイクル機構と同様, 上記の国の方針や計画に従い処分事業や安全規制に資する技術基盤の強化を目的とした研究開発が進められてきている。こうしたサイクル機構を含む関係機関の取り組みについて, 体系的かつ中長期的な視点でわが国全体の研究開発計画を検討していく必要性も認識されている。これに対応するため, サイクル機構と経済産業省資源エネルギー庁が進める調査事業を実施している関係機関は, 共同作業等を通じ, 実施主体や規制関係機関との情報交換, 大学の有識者などとの意見交換を行ってきた。その成果は, 今後の研究開発の体系化や効率化に向けた議論等に資することができるよう, 「研究開発全体マップ」としてまとめられている(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2005)。こうした議論を経て, 2005年7月には, 資源エネルギー庁の統括の下, 国の基盤的研究開発¹⁾を進める関係機関による「地層処分基盤研究開発調整会議」(資源エネルギー庁原子力政策課放射性廃棄物対策室, 2005)が組織され, 関係研究機関がわが国全体としてどのように研究開発を進めるべきかについて検討を行う基盤が整えられた。この会議体には, 原環機構や原子力安全・保安院及びその関係研究機関がオブザーバーとして参加することになっている。

国際的には, 「地層処分計画における段階的アプローチ」や「セーフティケース」に関する議論が活発に行われ, その重要性が広く認識されてきた(OECD/NEA, 2005)。地層処分計画は数十年以上の長い期間を要するため, 世代間の公平性の観点から, 計画を一気に進めるのではなく, 段階的に意思決定のプロセスを踏みながら進めていくという考え方(段階的アプローチ)が提案されている(OECD/NEA, 1995)。また, このようなアプローチにおいて各段階で行われる意思決定のための材料の中心をなすものとして, セーフティケースの概念が重要視されてきている。セーフティケースとは, 地層処分の長期的な安全性とその信頼性のレベルについての記述や定量化及びそれらを保証するための議論や証拠を統合したものと定義される(IAEA and OECD/NEA, 2004)。セーフティケースは基本的には処分事業の実施主体によって作成され, 規制当局など意思決定に関わる利害関係者にとって満足のいくものとなることが要求される。それぞれの段階で地層処分システムの理解度や利用可能な技術情報のレベルは異なることから, 各段階で構築されるセーフティケースは, 関連する研究開発分野の最新の技術や知見を取り込み, 論理的な合理性をもって相互に関係付けられていくことが必要であるとともに, 処分計画全体を通じて常に信頼性を高めていくことが要求される。このため, 研究開発によってセーフティケースに供給される科学技術情報の強化は, 実施側, 規制側を問わず, 長期間にわたる処分事業全体に対する信頼を支えるうえで不可欠なものとなる。このような観点から OECD/NEA では, 放射性廃棄物の地層処分で見守るセーフティケースの目的と一般的な内容を取りまとめ, 報告書として公表している(OECD/NEA, 2004)。また, 段階的アプローチに従い処分計画を実際に進めるうえで, 意思決定に関する可逆性と廃棄物の回収可能性を確保することの重要性が認識されてきており, 国際的な議論において, 回収可能性に関する技術開発は今後も継続すべきこと, 特にその技術的な信頼性

1) わが国の高レベル放射性廃棄物地層処分に関する地層処分計画を円滑に進めるため, 処分事業と安全規制の技術基盤の強化, 及び国民理解の増進に資することを目的として国が行う基盤的な研究開発(原子力環境整備促進・資金管理センター, 2005)

を高めるための実証が重要であること、また回収可能性の考慮は主に閉鎖前の期間を対象とし、技術開発もこの期間に焦点を置くべきことが提言されている（OECD/NEA, 2001）。

以上のような、国内外の最近の動向については、今後、サイクル機構（日本原子力研究開発機構）が進める研究開発を考えるうえで念頭においておく必要がある。

1.3 H17 取りまとめの目標と構造

上述したように、多岐にわたる研究開発を管理するうえで報告書の作成を通じて成果を集約することは重要であり、全体計画が5年の節目を迎え、深地層の研究施設計画が第1段階から第2段階へ移行しつつあること、研究開発を取り巻く国内外の状況が大きく変化していることなどを勘案すれば、第2次取りまとめ以降進めてきた研究開発成果を一旦取りまとめ、全体計画で示した個々の研究開発課題に対する達成度と今後の課題を明らかにするとともに、今後行うべき研究開発の方向性を合わせて提示することは意義のあることである。

このためサイクル機構では「高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築—平成17年度取りまとめ—」（以下、「H17取りまとめ」という）として、これを行うこととした。H17取りまとめは、図1.3-1に示すように研究開発の進捗を記述した3つの分冊レポートと、これらの研究成果に基づいて知識基盤の構造化を試みた知識化レポートで構成される。

分冊レポートは、図1.2-1に示した全体計画で展開している「深地層の科学的研究」、「処分技術の信頼性向上」、「安全評価手法の高度化」の3つの分野における研究開発成果を取りまとめたものである。このため、目次構成を図1.2-1の研究開発課題に対応させている。これらは、第2次取りまとめにおける分冊の構成にほぼ相当するものである。記載にあたっては、第2次取りまとめとの対比によって、その後の知見の充足、新たな課題、第2次取りまとめでは対象としていなかった領域での知見の取得を明示することにより、研究開発の進捗を明らかにすることとした。

一方、地層処分計画の進展のなかで研究開発を捉え、成果を技術基盤として統合するとともに将来の研究開発の優先順位を明らかにするための新たな視点として知識管理（knowledge management）に注目し、「地層処分技術の知識基盤の開発と管理」と題する報告書（知識化レポート）を作成した。第2次取りまとめの成果に加え、上記分冊レポートに示された研究開発成果を処分事業と安全規制を支える技術基盤としてより確かなものとするができるよう、必要な科学技術情報を構造化し継続的に最適化していく（知識基盤化）ための考え方を提示することに主眼をおいた。知識化レポートは、わが国における地層処分の技術的成立性を示した第2次取りまとめの「総論レポート」とは大きく異なっている。

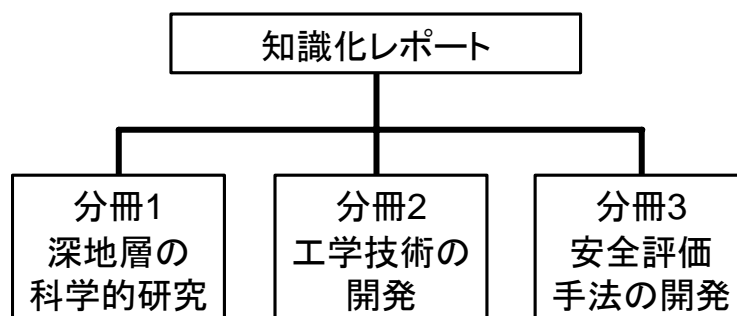


図 1.3-1 H17 取りまとめ報告書の構成

1.4 安全評価手法の高度化に関する研究の課題と進め方

全体計画で示された第2次取りまとめ以降の安全評価手法の高度化に関する目標は、1.2

節で示したように、これまで整備してきた地層処分に関連する様々な技術や手法を、実際の地質環境へ適用することを通じて、その信頼性を確認していくこと（実際の地質環境への地層処分技術の適用性確認）および処分システムに関連する現象への理解を深め、評価の信頼性を高めていくこと（地層処分システムの長期挙動の理解）である。

以下に安全評価手法の高度化に関する研究課題の設定と研究の進め方を示す。

1.4.1 研究課題の設定

安全評価手法の高度化に関しては、「実際の地質環境への地層処分技術の適用性確認」と「地層処分システムの長期挙動の理解」の2つの目標を設定した。これを踏まえ、個別課題を検討した。

個別課題の検討に際しては、通商産業省が示した「基本方針」に示された「国とその関連機関は、最終処分の安全規制、安全評価のために必要な研究開発や深地層の科学的研究などの基盤的な研究開発及び地層処分技術の信頼性の向上に関する技術開発などを積極的に進めていくことが必要である」との考え方に従い、サイクル機構の第2次取りまとめ以降の役割として、図1.4-1に示すように安全評価の実施を含む安全評価関連の全分野を網羅的にカバーするのではなく、安全評価の実施や安全評価手法の開発の基盤技術としての現象理解、モデル化、データ整備を中心とすることとした。

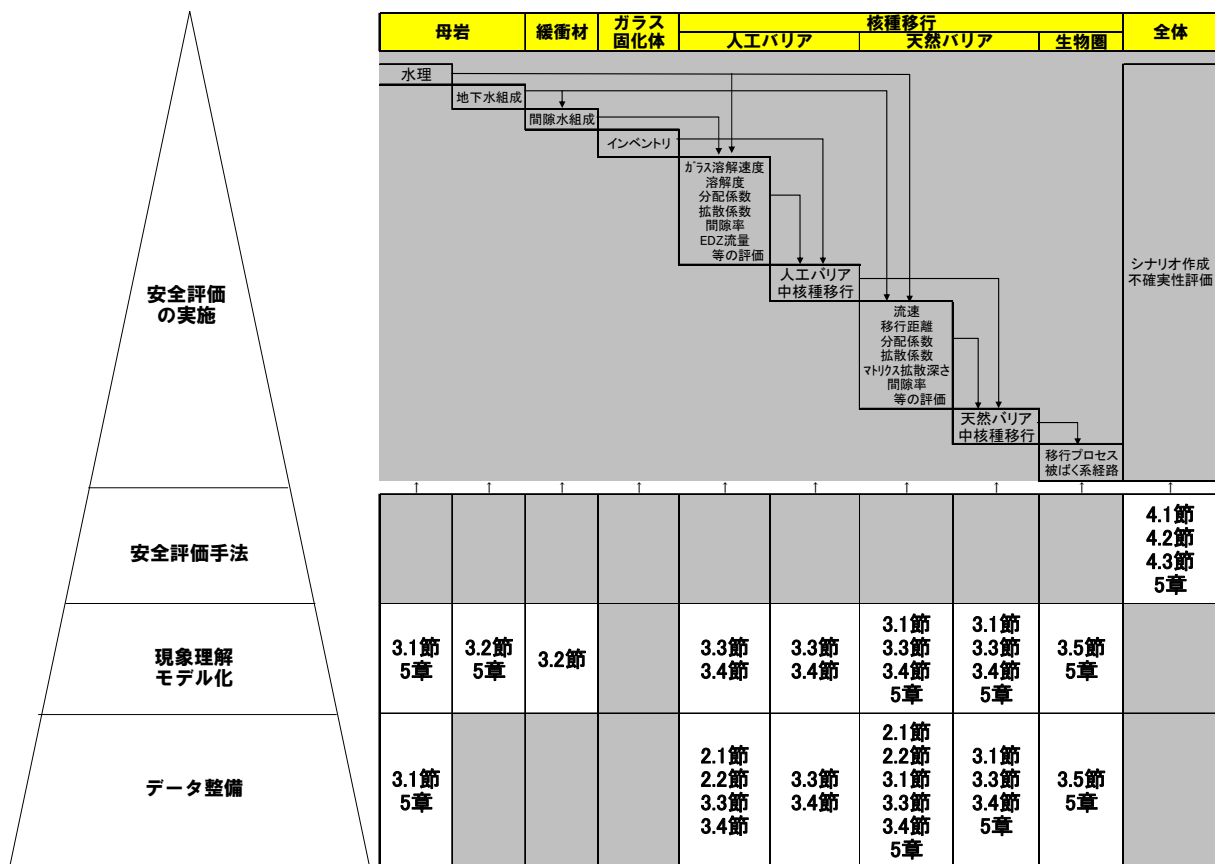


図 1.4-1 安全評価の全分野と H17 取りまとめの安全評価手法の高度化でカバーする範囲

表中の節番号は、本文中で記述した該当する節の番号を示した

2.1～2.2 節：核種移行データベースの整備

3.1～3.5 節：安全評価モデルの高度化

4.1～4.3 節：安全評価手法の整備・高度化

5 章：安全評価手法の適用性確認

各個別課題の設定に当たっては、第2次取りまとめの信頼性を以下の視点からさらに向上させることを目的として課題を抽出した。

- ・安全評価で用いる核種移行データの拡充とデータベースの更新
- ・安全評価上重要な現象に関する現象理解と個別現象モデルの開発
- ・実際の地質環境へ評価手法を適用するための手順の確立および必要な評価手法の改良・開発
- ・安全評価手法（シナリオ構築、情報管理など）の追跡性、透明性、わかりやすさの向上
- ・不確実性の取扱い技術の向上

以下に、設定した各個別課題について概説する。

①核種移行データベースの整備

核種移行パラメータについては、第2次取りまとめで用いた溶解度、収着、拡散などの核種移行パラメータの信頼性向上および拡充を目的とし、還元雰囲気、炭酸系でのアクチノイド元素の溶存化学種の明確化、海水系地下水や堆積岩系を対象としたデータの拡充などを行うこととした。また、透明性、客観性を高めるためにデータベースを定期的に更新・公開することとした。

②安全評価モデルの高度化

安全評価モデルの高度化については、安全評価解析の信頼性向上を目的として、実際の地質環境を評価していく上で必要と考えられる実際の地質あるいは地表環境の特徴を反映可能なモデルの改良を行うとともに、安全評価モデルの基礎となる現象理解に基づく個別現象モデルの開発、および不確実性の取扱い技術の向上などを図ることとした。

このため、以下の3つの視点に基づき課題を抽出した。

- ・第2次取りまとめ以降の課題とされた重要現象の理解とモデル化
- ・実際の地質環境の重要な特徴のモデルへの取り込みに必要な技術の開発・改良
- ・不確実性の取扱い技術の向上

具体的な課題として、重要現象の理解とモデル化については、亀裂中の水理・物質移行現象、堆積岩中の水理・物質移行現象、ガラスの長期浸出挙動、核種の溶解現象、核種の収着・拡散現象、コロイドなどの影響について現象理解を進め、個別現象モデルを開発・改良することとした。

実際の地質環境の重要な特徴のモデルへの取り込みに必要な技術については、地質環境の場を適切に表現するための、地下水流動評価手法、地下水・間隙水水質形成モデルおよび生物圏評価モデルについて開発または改良を行うこととした。

不確実性の取扱い技術の向上については、不均質性が重要となる地下水流動の分野において、堆積プロセスを考慮した地質構造推定技術、地下水流動解析結果の不確実性定量化技術、および原位置トレーサー試験より得られる水理・物質移行特性値の不確実性について検討することとした。

③安全評価手法の整備・高度化

安全評価の信頼性を確保するためには、モデルやデータの信頼性を高めるだけでなく、追跡性、透明性やわかりやすさなどを確保すること、不確実性が適切に取り扱われていることなどが必要とされている。このため、安全評価手法の整備・高度化については、こうした課題に対処するために、シナリオ解析技術、天然現象影響評価技術、不確実性評価技術の技術開発を行うとともに、各分野の技術情報を円滑に共有し、地質環境の調査・評価、設計および安全評価の整合性と信頼性の確保を図るための技術情報の統合技術の開発に取り組むこととした。

④安全評価手法の適用性確認

安全評価手法の適用性確認については、以下の2つの観点から検討することとした。

- ・ 図 1.4-1 のデータ整備、現象理解・モデル化、安全評価手法に含まれる個別の要素技術を実際の地質環境に適用するあるいは適用を通じて開発・改良するとともに、実際の地質環境を対象とする場合の留意点・課題の抽出を行う。
- ・ 実際の地質環境を対象とした地質環境の調査・評価から物質移行解析に至る一連の評価を行うための作業手順の構築や必要となる技術・手順の開発または改良を行う。

以上の課題を整理すると、サイクル機構の取り組む課題は図 1.4-2 に示すようになる。

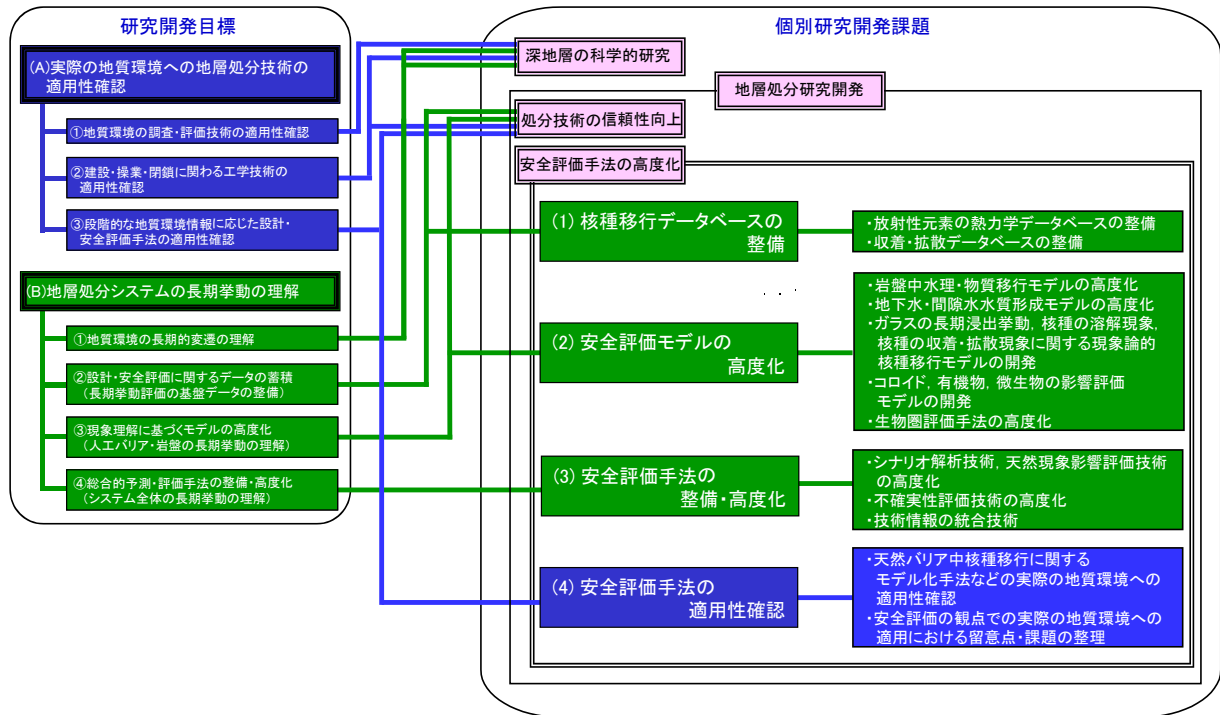


図 1.4-2 安全評価手法の高度化に関する研究開発の目標と個別研究開発課題の関係

ここで留意すべきことは、本項の冒頭で述べたように、第2次取りまとめ以降の安全評価手法の高度化に関する研究においては、安全評価の実施を含む安全評価関連の全分野を網羅的にカバーするのではなく、安全評価の実施や安全評価手法の開発の基盤技術としての現象理解、データ整備の中から重要な課題を選択して実施しているという点である。その点において、H17 取りまとめは、網羅性を重視した第2次取りまとめとは性格を異にしていると言える。

なお、ここで抽出した課題は、OECD/NEA, IAEAをはじめ、国際ワークショップや国際共同プロジェクトなどにおいても重要視されており、世界的な研究開発の動向とも整合したものとなっている。たとえば、熱力学データベースについては、放射性元素の熱力学データベース利用に当たっての適用性と課題に関する国際ワークショップ(OECD/NEA, 2002)、収着については、核種の収着現象解析モデルの適用性に関する現状と課題(OECD/NEA, 2001b)、コロイドについては、コロイド影響に関するグリムゼル原位置試験結果とその解釈(Möri et al., 2003)、亀裂中の水理物質移行における亀裂内概念モデルの詳細化についてはスウェーデン核燃料・廃棄物管理会社(SK B)の研究計画(SK B, 2004)などと整合したものとなっている。

また、1.1 で述べたように、全体計画策定後のわが国の動きとして、事業側については原環機構の公募開始とそれに伴う、「高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性－「処分場

の概要」の説明資料一」（原子力発電環境整備機構，2004a）の公開，規制側については，「高レベル放射性廃棄物の処分に係る安全規制の基本的考え方について(第1次報告)」（原子力安全委員会，2000），「放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について」（原子力安全委員会，2004），「高レベル放射性廃棄物処分の概要調査地区選定において考慮すべき環境要件について」（原子力安全委員会，2002），「高レベル放射性廃棄物処分の安全規制に係る基盤確保に向けて」（総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会，2003）の策定，関連する学会報告では，「高レベル放射性廃棄物地層処分技術の現状とさらなる信頼性向上にむけてー土木工学に係わる技術を中心としてー」（土木学会原子力土木委員会，2004）などが取りまとめられている。

これらの報告書においては，事業推進に係わるニーズとして，モデルやデータの最新の成果を取り込んだ更新，過度に保守的とならないようなパラメータ設定，安全評価のための具体的なデータ項目や収集方法，事業の進展に応じたサイト環境情報の適切な反映，不確実性の明確化，基本定数などのデータベース整備，安全評価基盤の整備などが示されている。安全規制に係わるニーズとしては，事業推進に係わるものと共通なものが多いが，上記以外では，サイト固有の状況に応じた安全評価のための指標や基準値の具体化，コロイドなどの影響に関する取り扱い，安全評価の期間，概要調査地区選定段階以降の段階で考慮すべき環境要件の検討における設計・施工での対応や処分システム全体の安全機能との関連などが抽出された。

これらの動きの中で，様々なニーズが示されているが，これらのニーズについても可能な限り対応を図るようにした。

1.4.2 研究の進め方

核種移行データの整備については，QUALITY の雰囲気制御下でのデータ取得を中心に進めることとした。

安全評価モデルの高度化については，以下の手順で実施することとした。

- ①深地層の研究施設計画および海外の地下研究施設などから得られる様々な調査フェーズにおける試験結果の解釈を通じて重要な現象を抽出し，主に ENTRY, QUALITY における試験や海外との共同研究における室内試験など場や境界条件などを適切に制御した試験を通じて現象理解を行う。
- ②現象理解に基づいてモデルを構築し，深地層の研究施設計画や海外の地下研究施設での試験のモデル化に適用し信頼性を確認する。

室内試験によるモデル，データベースの開発と深地層の研究施設計画における地質環境調査などとの連携を踏まえた安全評価手法の高度化に関する研究の進め方を図 1.4-3 に示す。

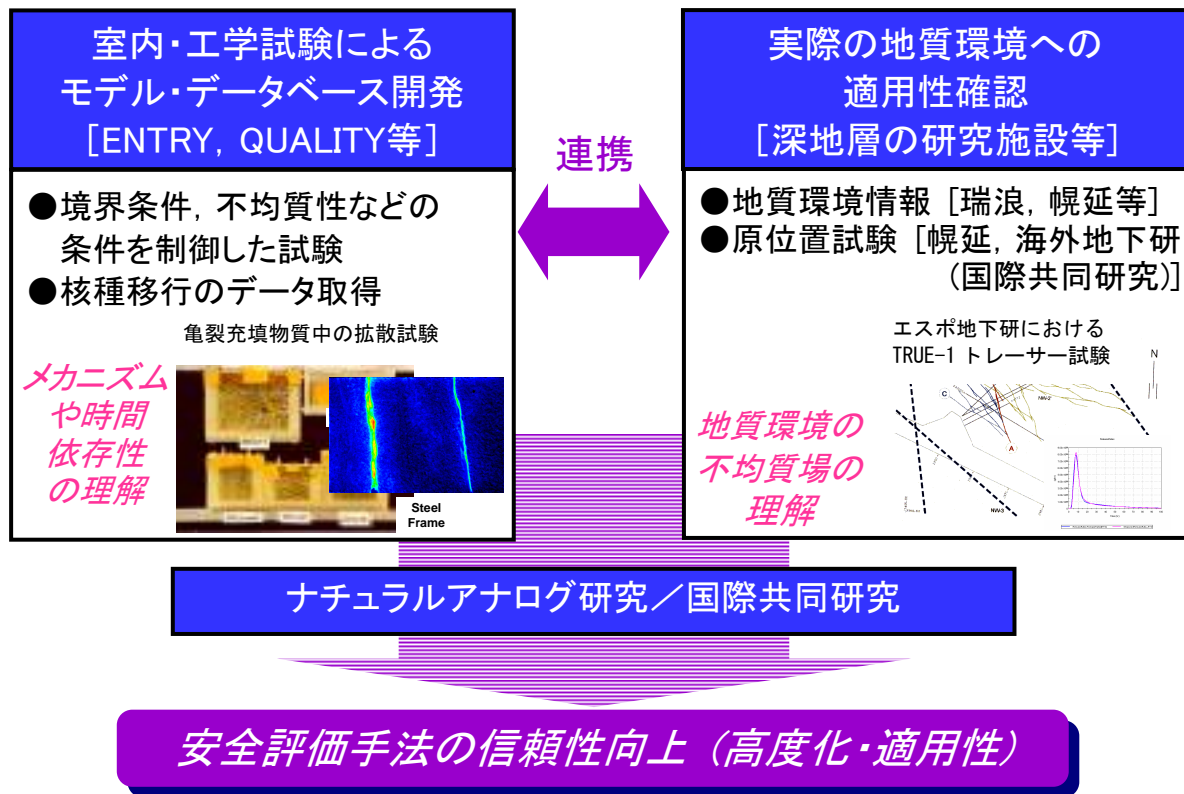


図 1.4-3 安全評価手法の高度化に関する研究の進め方

1.5 本報告書の構成と内容

本報告書は、以下の 6 つの章から構成されている。

- 第 1 章 はじめに
- 第 2 章 核種移行データベースの整備
- 第 3 章 安全評価モデルの高度化
- 第 4 章 安全評価手法の整備・高度化
- 第 5 章 安全評価手法の適用性確認
- 第 6 章 おわりに

本報告書においては、上記に述べた第 2 次取りまとめ以降の安全評価手法の高度化における研究開発の進展を記述している。第 2 章から第 4 章の各項目においては、「はじめに」、 「研究内容」、 「結論」、 「今後の課題」の順で記述している。「はじめに」においては、課題を設定した背景について記述した。「研究内容」においては、試験、解析などの実施内容と結果を記述した。「結論」においては、第 2 次取りまとめ以降どのように進捗したか、また事業・安全規制に成果がどのように反映可能かを記述した。また最後に、「今後の課題」として、次のフェーズで取り組むべき課題について記述した。第 5 章では、深地層の研究施設計画や海外の地下研究施設などの実際の地質環境を対象として行った安全評価手法の適用性検討や手法の開発の成果と実際の地質環境における評価を行う際の留意点・課題について記述した。また、実際の地質環境を対象とした一連の評価を行うための技術の検討結果について述べた。第 6 章では、第 2 次取りまとめ以降の研究の進捗および事業・安全規制への反映点を要約した。

なお、参考として第 2 次取りまとめ以降の個別課題の進捗を表にまとめ、付録として添付した。

参考文献

土木学会原子力土木委員会 (2004): “高レベル放射性廃棄物地層処分技術の現状とさらなる信頼性向上にむけて—土木工学に係わる技術を中心として—”.

動力炉・核燃料開発事業団 (1992): “高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成3年度—”, PNC TN1410 92-081.

原子力安全委員会 (2000): “高レベル放射性廃棄物の処分に係る安全規制の基本的考え方について(第1次報告)”, 平成12年11月6日.

原子力安全委員会 (2002): “高レベル放射性廃棄物の概要調査地区選定段階において考慮すべき環境要件について”, 平成14年9月30日.

原子力安全委員会 (2004): “放射性廃棄物の安全規制における共通的な重要事項について”, 平成16年6月10日.

原子力発電環境整備機構 (2001): “特定放射性廃棄物処分の概要調査地区等の選定手順の基本的考え方について”, 官報, 号外第238号, 平成13年11月8日.

原子力発電環境整備機構 (2002a): “応募要領, 高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募関係資料—1”.

原子力発電環境整備機構 (2002b): “処分場の概要, 高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募関係資料—2”.

原子力発電環境整備機構 (2002c): “概要調査地区選定上の考慮事項, 高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募関係資料—3”.

原子力発電環境整備機構 (2002d): “地域共生への取組み—地域と事業を結ぶために—, 高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募関係資料—4”.

原子力発電環境整備機構 (2004a): “高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性—「処分場の概要」の説明資料—”, 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-04-01.

原子力発電環境整備機構 (2004b): “概要調査地区選定上の考慮事項の背景と技術的根拠—「概要調査地区選定上の考慮事項」の説明資料—”, 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-04-02.

原子力委員会 (1976): “放射性廃棄物処理処分対策について”, 昭和51年10月8日.

原子力委員会 (2000): “原子力の研究, 開発及び利用に関する長期計画(平成12年)”, 平成12年11月24日.

原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会 (2000): “我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術的信頼性の評価”, 平成12年10月11日.

原子力環境整備促進・資金管理センター (2005): “高レベル放射性廃棄物地層処分に関する研究開発全体マップの整備”, 原子力環境整備促進・資金管理センター, RWMC-TRJ-04005-1.

IAEA and OECD/NEA (2004): “Geological Disposal of Radioactive Waste”, International Atomic Energy Agency, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, IAEA Safety Standards Series, Draft Safety Requirements DS154, IAEA, Vienna (Status: Out for comment by Member States).

核燃料サイクル開発機構 (1999): “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—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 99-020~024.

核燃料サイクル開発機構 (2002): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発－平成 13 年度報告－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2002-003.

核燃料サイクル開発機構 (2003): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発－平成 14 年度報告－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2003-004.

核燃料サイクル開発機構 (2004): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発－平成 15 年度報告－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2004-007.

核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会(廃棄物処理処分課題評価委員会) (2000): “平成 12 年度研究開発課題評価(中間評価)報告書, 課題評価「深地層の研究施設における研究計画」－主に超深地層研究所計画第 2 段階の計画案について－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2000-010.

核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会(廃棄物処理処分課題評価委員会) (2001): “平成 13 年度研究開発課題評価(中間評価)報告書, 課題評価「高レベル放射性廃棄物地層処分研究の全体計画」”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2001-008.

文部科学省 原子力二法人統合準備会議 (2003): “原子力二法人の統合に関する報告書”, 文部科学省.

Möri, A., Alexander, W. R., Geckeis, H., Hauser, W., Schafer, T., Eikenberg, J., Fierz, Th., Degueldre, C. and Missana T. (2003): “The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock”, Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects, Vol.203, pp.33-47.

内閣総理大臣 (1997): “国の研究開発全般に共通する評価の実施方法の在り方についての大綱的指針”, 内閣総理大臣決定.

NUMO (2004a): “Development of Repository Concepts for Volunteer Siting Environment”, Nuclear Waste Management Organization of Japan, NUMO-TR-04-03.

NUMO (2004b): “Evaluating Site Suitability for a HLW Repository, Scientific Background and Practical Application of NUMO's Siting Factors”, Nuclear Waste Management Organization of Japan, NUMO-TR-04-04.

NUMO (2004c): “Proceedings of the International Workshop on Bentonite-Cement Interaction in Repository Environments”, Nuclear Waste Management Organization of Japan, 14-16, April, 2004, Tokyo, Japan, NUMO-TR-04-05.

OECD/NEA (1995): The Environmental and Ethical Basis of Geological Disposal, A Collective Opinion of the Radioactive Waste Management Committee of the OECD/Nuclear Energy Agency, Paris, France, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency.

OECD/NEA (2000): Stakeholder Confidence and Radioactive Waste Disposal, Workshop Proceedings, OECD, Paris.

OECD/NEA (2001a): “Reversibility and Retrievability in Geologic Disposal of Radioactive Waste, Reflections at the International Level, OECD/Nuclear Energy Agency, Paris, France.”, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency.

OECD/NEA (2001b): “Using Thermodynamic Sorption Models for Guiding Radioelement Distribution (Kd) Coefficient Investigations”, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, ISBN 92-64-18679-4.

OECD/NEA (2002): “The Use of Thermodynamic Databases in Performance Assessment”,

Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, ISBN 92-64-19846-6.

OECD/NEA (2005): Geological Repositories: Political and Technical Progress, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Workshop Proceedings, Stockholm, Sweden, 8-10 December 2003, ISBN: 92-64-00830-6.

ONDRAF/NIRAS (2002): "Backfilling in Radioactive Waste Disposal", National Agency for Radioactive Waste and Enriched Fissile Materials", 6th International Workshop on Design and Construction of Final Repositories, Brussels.

資源エネルギー庁原子力政策課放射性廃棄物対策室 (2005): "高レベル放射性廃棄物処分に
関する基盤的研究開発の動向について", 第33回原子力委員会資料第2号, 平成17年8月30
日.

SKB (2004): "RD&D-Programme 2004, Programme for Research, Development and
Demonstration of Methods for the Management and Disposal of Nuclear Waste, Including
Social Science Research", Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB),
TR-04-21.

総合資源エネルギー調査会 原子力部会 (2001): "原子力の技術基盤の確保について", 平成13
年6月.

総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 廃棄物安全小委員会 (2003): "高レベル放
射性廃棄物処分の安全規制に係る基盤確保に向けて", 総合資源エネルギー調査会原子力安
全・保安部会 廃棄物安全小委員会報告書, 平成15年7月8日.

通商産業省 (2000a): "特定放射性廃棄物の最終処分に
関する基本方針を定めた件", 平成12
年10月2日, 通商産業省告示第591号.

通商産業省 (2000b): "特定放射性廃棄物の最終処分に
関する計画を定めた件", 平成12年10
月2日, 通商産業省告示第592号.

2. 核種移行データベースの整備

本章では、1.4.1項で示した課題と進め方を踏まえて実施した「核種移行データベースの整備」に関する検討について、以下の項目ごとにこれまでの成果をまとめる。

- ・放射性元素の熱力学データベースの整備
- ・収着・拡散データベースの整備

2.1 放射性元素の熱力学データベースの整備

(1) はじめに

安全評価において、地下水中や緩衝材間隙水中での核種の溶解度の決定および収着・拡散パラメータの決定における基礎情報としての化学種分配の把握のために、評価対象元素の固相の溶解度積や溶存化学種の生成定数といった熱力学データは最も重要な情報のひとつである。

熱力学データの選定は国際的にも重要視されており、OECD/NEAにおいても国際共同プロジェクトとして1980年代後半から継続的に元素ごとに報告されている熱力学データのレビューを行い、信頼できるデータを選定する作業が実施されている。現在、同プロジェクトへの参加機関は11ヶ国16機関で、日本からはサイクル機構が参加している。同プロジェクトでは、Phase IIまでに8元素（U, Am, Tc, Np, Pu, Se, Ni, Zr）に対するデータのレビューおよびデータ選定を終了している（Grenthe et al., 1992 ; Silva et al., 1995 ; Rard et al., 1999 ; Lemire et al., 2001 ; Gamsjäger et al., 2005 ; Olin et al., 2005）。Phase Iにおいてデータ選定が行われた元素については、最新データを取り込んだ再レビューを実施し、選定データの更新も行われている（Guillaumont et al., 2003）。現在、これら8元素に対する有機物錯体に関するデータの選定が終了し、データベース公開の準備が進められているとともに、Phase IIIとして、新たにTh, Fe, MoおよびSnについてデータのレビューを行うことが決定されている。OECD/NEAによるデータベース整備は、熱力学データの値の科学的信頼性を評価するという観点から進められており、存在が認められている化学種であっても信頼性のある値が選定できない場合には値を提示していない。したがって、OECD/NEAの熱力学データベースだけを用いて溶解度計算を行うと、実験で認められている濃度よりも低い濃度が計算される場合もあり、同データベースのみをもって安全評価のための適切な計算が可能というものではない。各国の安全評価報告書においても、独自の熱力学データベース（たとえば、Hummel et al., 2002）を整備するとともに、安全評価における溶解度設定の考え方を示すこと（たとえば、Bermer, 2002）が必要となっている。また、これらのデータベースや設定の考え方については適宜最新の知見を反映し見直されるべきものである。

第2次取りまとめにおいては、その当時のOECD/NEAによるデータベースはAmおよびUの2元素についてしか整備されていなかったこともあり、サイクル機構独自に熱力学データベース（JNC-TDB）を整備した（Yui et al., 1999a）。この際、安全評価において重要性が示された元素の熱力学データの一部には、実験データの充足が望まれるもの、既往の報告値が比較的広い範囲に分布することから値の再評価が望まれるもの、化学的挙動が類似する元素間でのデータの傾向について議論が望まれるものなどがあり、これらは今後の課題とされた。また、データベース整備の過程で利用される活量係数の補正方法が統一的でなかったことも、今後の課題のひとつとされた。

このような状況を踏まえ、第2次取りまとめ以降は、安全評価上の重要性が示された元素の溶解度に直接影響を与える熱力学データについて、データ取得を行い、その値の評価を行うことを重点的に実施することとし、併せて、活量係数補正方法に関する情報収集と検討を実施した。さらに、OECD/NEAをはじめとする国内外の熱力学データ整備や関連研究の動向調査を行い、JNC-TDBの更新準備を進めるとともに、国内外への成果の公開の観点から、

熱力学データベースの利用環境の向上および情報提供を実施することとした。

重要元素の熱力学データ取得と評価に関する研究として以下の4項目を実施した。

- ・アクチニド IV 価のヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データの取得と評価

Np(IV)をはじめとする IV 価のアクチニド元素は、第2次取りまとめにおけるレファレンスケースのように、炭酸を含む還元性の地下水条件下では、ヒドロキソ炭酸錯体が支配化学種として存在することが予想されており、ヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データは、溶解度に直接的に影響を及ぼす値として重要である。

しかしながら、第2次取りまとめ時点において Np についての酸化還元状態の制御などの実験条件が適切で信頼性の高いデータは Rai et al. (1999a) の報告があるのみであった。Pu については、Rai et al. (1999b) と Yamaguchi et al. (1994) の報告が存在したが、平衡定数が2桁程度異なり、また、値の導出に用いた活量係数補正方法も異なるものであった。したがって、Np(IV)のヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データを得るための実験を行い、熱力学データの拡充を行うことが、溶解度評価に用いるデータ信頼性向上につながるものと判断した。

- ・アクチニド IV 価の含水酸化物アモルファスの溶解度積データの取得と評価

アクチニド IV 価の含水酸化物の溶解度積は、溶解度の値に直接的に影響を及ぼす値である。第2次取りまとめにおいては、Rai を中心とする研究グループによって報告されている値に基づき、溶解度積の値を選定した (Rai et al., 1999c)。しかしながら、様々な研究者による報告値を概観すると、それらの値は数桁程度異なり、信頼性の高いデータの充足による値の確認が必要であった。また、アクチニド IV 価の元素相互での溶解度積の傾向の定性的な議論は行われていたが、新しいデータを含めた系統性に関する検討と値の再評価が課題であった。

- ・アクチニド IV 価の加水分解定数の取得と評価

第2次取りまとめにおける海水系地下水に対する緩衝材間隙水のように、比較的炭酸濃度が低くなる条件では、 $An(OH)_4(aq)$ (An: アクチニド元素) が支配的な溶存化学種となる場合がある。第2次取りまとめ時点においては、 $An(OH)_4(aq)$ に対する加水分解定数は中性付近での $AnO_2(am)$ の溶解度をもとに決定されているが、中性付近での溶解度が低く検出限界値程度であるため、溶解度積が最大値として与えられているものが多い。したがって、逐次の加水分解反応に関する熱力学データの確認による $An(OH)_4(aq)$ の熱力学データの妥当性検討も課題であった。また、第2次取りまとめ以降、処分システムへのセメント系材料の影響評価が課題とされており、アクチニド IV 価の高次の加水分解種の存在可能性の検討など、従来十分に検討が行われていなかった高 pH 領域における熱力学データの信頼性向上が課題であった。

- ・Fe-Se 系熱力学データの確認、 $FeSe_2$ による溶解度支配の確認

第2次取りまとめの評価結果では、Se-79 は処分後比較的初期の約 10^5 年までの段階で、線量評価上最も重要な核種となることが示されている。第2次取りまとめにおいては、処分環境におけるオーバーパック起源の Fe の存在を考慮し、Fe-Se 系固相の生成を示す試験結果 (立川ほか, 1999) に基づき、 $FeSe_2$ を溶解度制限固相として、既存の熱力学データによる溶解度評価を実施した。しかしながら、Fe-Se 系固相の熱力学データの妥当性の確認や、 $FeSe_2$ 平衡の際の Se 濃度の確認を行うために、実験データの充足が課題であった。

活量係数補正方法に関する情報収集と検討に対応する具体的な課題として、Pitzer パラメータの調査・整備と同モデルに基づく地球化学計算環境の整備を実施した。

イオン強度の高い溶液中では化学種の濃度と活量の差が大きくなる傾向がみられる。この差を補正するパラメータとして活量係数が用いられる。活量係数は、系に存在する化学種の特長や溶液のイオン強度に依存して変化することが知られており、いくつかの活量係数補正方法が提案されている (たとえば Grenthe and Puigdomenech, 1997)。第2次取りまとめ

においては、イオン強度が海水程度 ($I=0.6$) までの地下水を想定している (Yui et al., 1999b)。このような条件において、より精度よく活量係数補正が行える方法を検討することが求められている。第 2 次取りまとめにおける溶解度設定 (東ほか, 1999) では、イオン強度 $I=0.3$ 以上では活量係数を $I=0.3$ の値に固定する変形 Davies モデルを用いるとともに、高イオン強度条件に対して適用可能な Pitzer モデル (Pitzer, 1991) を用いた活量係数補正方法の妥当性を A_m および T_h の溶解度計算により議論した。しかしながら、東ほか (1999) が行った Pitzer モデルによる活量係数補正計算には、パラメータを充実することにより、より精度良く計算を行うことできる余地が残されており、既往の Pitzer モデルのイオン間相互作用定数の報告値の調査とデータベースの整備および最新の Pitzer パラメータデータベースを用いた活量係数補正方法に関する再検討が課題とされていた。

熱力学データベースの利用環境の向上および情報提供に対応する課題として、各種地球化学計算コードに対応した熱力学データベース電子ファイルの外部公開ホームページなどによる外部公開・配布が課題であった。

第 2 次取りまとめの溶解度計算などに利用した熱力学データベースについては、透明性、追跡性の担保の観点から、公開資料 (Yui et al., 1999a) としている。同資料には、地球化学計算コード PHREEQE (Parkhurst et al., 1980) による溶解度計算に用いた電子ファイルの内容を印刷物として添付していたが、現実的に追跡作業を実施するためには、電子ファイルの公開、配布が必要であった。さらに、実際の利用者の利便性を考慮すると、第 2 次取りまとめに用いた熱力学データベース以外の熱力学データベースとの相互比較計算、他の汎用地球化学計算コードでの利用などが望まれるものと判断し、これらに対応したシステムを外部公開ホームページ上に構築し、外部の利用者に広く公開、配布を行うこととした。

なお、第 2 次取りまとめ以降の地層処分具体化に向けた動きの中でも、データベース整備の重要性が認識されている。たとえば、事業の実施主体である原環機構はデータの信頼性を高めるための研究開発成果を取込んだデータベースの更新が重要であるとしている (原子力発電環境整備機構, 2004)。一方、安全規制側からは、安全規制の研究に利用される一般データの信頼性・客観性の重要性が指摘されている (総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会, 2003)。これらの要求に応えるためにも、データの品質保証を考慮しつつ、着実な研究開発に基づく恒常的なデータベース開発および更新が必要である。

(2) 研究内容

(i) 重要元素の熱力学データ取得と評価

(a) アクチニド IV 価のヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データ取得と評価

第 2 次取りまとめにおけるレファレンスケースでの間隙水水質のように、弱アルカリ性で $10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度の炭酸を含む水溶液中では、アクチニド IV 価はヒドロキソ炭酸錯体が支配化学種となる (東ほか, 1999)。しかしながら、前述のとおり、このような化学条件での溶解度および溶存化学種に関する研究が少なく、実験データの充足が必要であった。第 2 次取りまとめにおける安全評価において、アクチニド元素の中で線量を支配する核種は、 $Np-237$ と放射平衡となる $Th-229$ であり、 Np は評価上重要な元素であることから、 Np の炭酸水溶液下における溶解度測定試験と炭酸共存条件で存在する化学種に対する熱力学データの導出を行った (Kitamura and Kohara, 2004)。

Np の溶解度測定は過飽和法 (一部未飽和法) で行った。 $Np-237$ の V 価の溶液を過塩素酸に溶解したものから出発し、全炭酸濃度 (C_T) を一定にして pH_c (水素イオン濃度の負の対数) 依存性を調べるものと、 pH_c を一定にして C_T 依存性を調べるものの 2 種類の実験試料を作製した。 $Np-237$ の初期添加濃度は、過飽和により沈殿が生成するよう $10^{-5} \sim 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ に設定した。水溶液の pH_c は $HClO_4$ および $NaOH$ を用いて 8~13 に、 C_T は $NaHCO_3$ もしくは Na_2CO_3 を用いて $5 \times 10^{-3} \sim 7 \times 10^{-1} \text{ mol dm}^{-3}$ に変化させて溶解度測定を行った。イオン強

度(I)は、 NaClO_4 を用いて0.5~2.9に調整した。また、還元剤として $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ （亜二チオン酸ナトリウム）を、試料溶液中で 0.05 mol dm^{-3} になるよう添加した。このような水溶液をポリプロピレン製容器中で一定期間振とうしたのち、 pH_c 、酸化還元電位（Eh）、 C_T および溶存Np濃度の測定を行った。試験は、放射能測定を除き全てArガス雰囲気制御グローブボックス内で実施した。実験結果を図2.1-1および図2.1-2に示す。

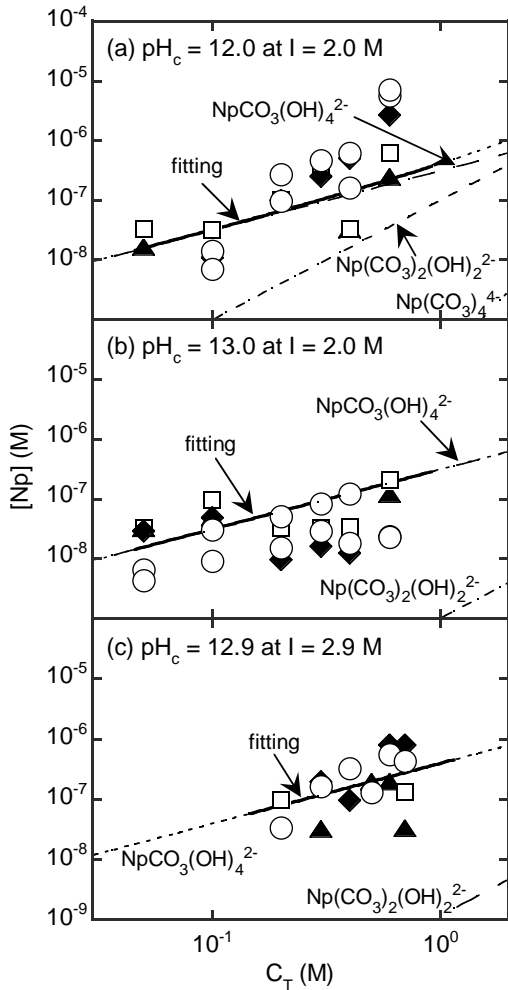


図 2.1-1 アルカリ性水溶液中における Np(IV)溶解度の全炭酸濃度依存性

▲, □, ◆, ○は、(a)(b)ではそれぞれ0.5, 1, 3, 5か月振とう後、(c)ではそれぞれ1, 2, 3, 4か月振とう後の値を示す。実線は最小二乗法による適合結果を示し、破線および点線はそれぞれ対応する化学種の寄与を示す。

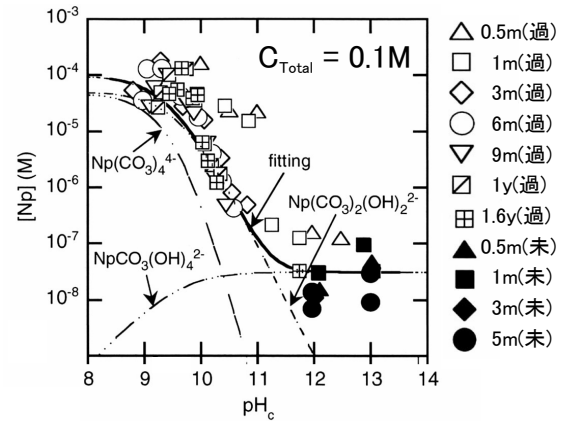
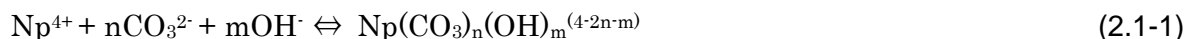


図2.1-2 炭酸共存下でのNp(IV)の溶解度の pH_c 依存性

凡例中の数字は試験期間(m:月, y:年)を、(過),(未)はそれぞれ過飽和試験、未飽和試験を示す。実線は最小二乗法による適合結果を示し、破線および点線はそれぞれ対応する化学種の寄与を示す。

本実験で観察された沈殿固相は褐色であった。固相を溶解後、テノイルトリフルロアセトン（TTA）のキシレン溶液で溶媒抽出を行うことによりIV価であることを確認した。高pH側で実施した未飽和側の試験は、過飽和側の試験と良い一致を示した。試験溶液の pH_c 、Ehなどの溶液条件は、既存の熱力学データに基づくといずれもNp(IV)が安定な領域である。これらの事実から、本実験において溶液中のNp濃度を支配しているのはIV価の化学種と考えることが妥当であると判断した。図2.1-1では、いずれの図においても $\log[\text{Np}]$ の $\log C_T$ に対する傾き（Np溶存化学種における炭酸イオン（ CO_3^{2-} ）の配位数を示す）は明確ではないが、溶解

度の pH_c 依存性と併せて、最小二乗法による適合を行った結果、支配的な溶存化学種は $NpCO_3(OH)_4^{2-}$ であることが分かった。各イオン強度 (I) の条件に対して導出される見かけの平衡定数から、SIT法 (specific ion interaction theory) (たとえばGrenthe and Puigdomenech, 1997) による活量係数補正方法に従い、 $I=0$ の標準状態における安定度定数 $\beta_{n,m}^0$ を導出した。表2.1-1に本研究 (Kitamura and Kohara, 2004) により得られた値を既往の報告値と併せて示す。 $\beta_{n,m}^0$ は(2.1-1)式で示される反応式の平衡定数として定義される。



なお、この $\beta_{n,m}^0$ を求める際には、Np 水和酸化物 $NpO_2 \cdot xH_2O$ の溶解度積として $10^{-56.7 \pm 0.5}$ (Guillaumont et al., 2003) を用いた。

表2.1-1 溶解度試験から得られたNp(IV)ヒドロキソ炭酸錯体の安定度定数 $\beta_{n,m}^0$

元素	(n,m)	$\log \beta_{n,m}^0$	文献
Np	(2,2)	46.4 ± 0.5	Kitamura & Kohara, 2004
	(2,2)	43.17	Rai et al., 1999a
U	(2,2)	41.33	Rai et al., 1998
Pu	(2,2)	44.76	Rai et al., 1999b
Np	(1,4)	50.5 ± 0.5	Kitamura & Kohara, 2004

Np(IV)のヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データについては、OECD/NEA のデータレビューにおいても議論が行われている。Phase I のレビュー結果 (Lemire et al., 2001) ではヒドロキソ炭酸錯体の存在についての確固たる証拠はないとしていた。しかしながら、Phase II におけるデータ更新の議論 (Guillaumont et al., 2003) では、Phase I 以降に報告された Rai et al. (1999a) および Kitamura and Kohara (2001) の報告を引用し、Np(IV)のヒドロキソ炭酸錯体の存在が強く示唆されるとした。ただし、類似条件で実施されている Eriksen et al. (1993) の実験結果と不一致が認められることなどから、Np(IV)のヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データの選定は行われなかった。なお、Eriksen et al. (1993) の溶解度試験については、第2次取りまとめの溶解度評価 (東ほか, 1999) においては、その試験条件 (固液分離を $0.1 \mu m$ フィルターで実施) が、処分システムを考慮した溶解度評価には適切ではないとして参考値としている。

このように、データが不足していることから信頼性の高い熱力学データの議論が困難であった化学種について、国際的な議論に値する新たな報告を行うことができたことは重要な進展であると考え。今後は、後述するサイクル機構としての熱力学データベースの更新において、他のアクチニド IV 価との類似性や傾向性と併せて議論を行い、有効な情報のひとつとして利用していく。

なお、参考として、第2次取りまとめにおけるレファレンスケースでの緩衝材間隙水条件で、OECD/NEA (Guillaumont et al., 2003) により選定された熱力学データベースに Kitamura and Kohara (2004) により導出された Np(IV)ヒドロキソ炭酸錯体の熱力学データを加えて、Np の溶解度を計算した。その結果、支配化学種は $Np(CO_3)_2(OH)_2^{2-}$ となり、第2次取りまとめにおける評価と同じであるが、溶解度の値は第2次取りまとめの値からおよそ1桁上昇することになる。

(b) アクチニド IV 価の含水酸化物アモルファスの溶解度積データの取得と評価

第2次取りまとめにおけるアクチニド IV 価の溶解度制限固相はいずれも含水酸化物アモル

ファス($\text{AnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$)であり、それら溶解度積の値は重要な熱力学データである。 $\text{AnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ の溶解度積は、その8配位の見かけのイオン半径の2乗の逆数と直線的な関係があることが Rai et al. (1987) により指摘されていた。しかしながら、第2次取りまとめで用いた値 (Yui et al., 1999a) では、Felmy et al. (1991) で見直された Th の値、Rai et al. (1997) の U の値が選定されており、この Rai の指摘する直線性から若干はずれていた。また、Yui et al. (1999a) では選定されなかったものの、Östhols et al. (1994), Kim and Kanellakopoulos (1989), Capdevila and Vitorge (1998) などは、Rai et al. (1987) による直線よりも小さな溶解度積の値を報告しており、数桁のばらつきが認められる (図 2.1-3)。

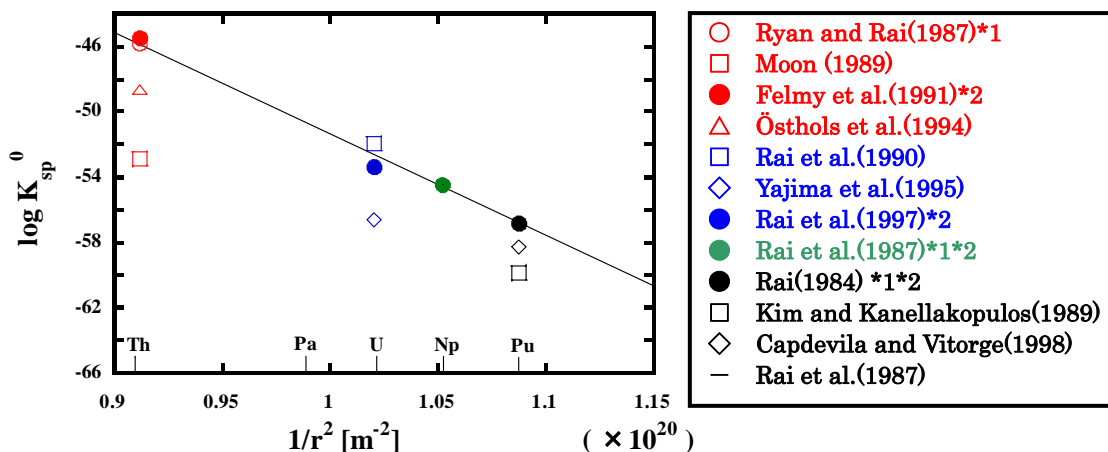


図2.1-3 アクチニドIV価イオンのイオン半径と含水酸化物の溶解度積の関係
(第2次取りまとめ時点)

図中の直線はRai et al. (1987) より引用。*1の3点が直線関係にあるとしている。

*2はYui et al. (1999a) で選択された値

このような状況に鑑み、より信頼性の高い $\text{AnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ の溶解度積の選定と、アクチニド間相互の系統的な議論を行うことを目的として、U、Np および Pu について $\text{AnO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ の溶解度積の再測定を実施した。U については Fujiwara et al. (2003) に、Pu については Fujiwara et al. (2002) に詳述されている。ここでは、QUALITY において実施した $\text{NpO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ に関する実験 (藤原・小原, 2004; 藤原ほか, 2004) について述べる。

実験は、過飽和法および不飽和法で実施した。試験溶液に添加する Np-237 の溶液は水素ガスを用いて還元し III 価とした。III 価の Np は不安定で IV 価に酸化する性質があるので、III 価の原液を試料溶液に加え、試験を開始した。試料溶液は、過塩素酸ナトリウム NaClO_4 を用いることによりイオン強度を調整し、原液を加え、 HClO_4 もしくは、 NaOH を用いて pH_c を調整した。一定期間静置させ、試料中の固液間を平衡にした。平衡に到達した試料溶液の pH_c 、酸化還元電位および溶存 Np 濃度を測定した。Np の溶存化学種については、吸光スペクトル法と溶媒抽出法により IV 価であることを確認した。Np の濃度の定量は、コロイドの影響を抑えるために分画分子量 3,000 のフィルターに通したのち、ろ液中の Np-237 の α 線を半導体検出器で測定することにより行った。放射能測定以外の操作は、すべて窒素雰囲気グローブボックス内 (酸素濃度 1 ppm 未満) で実施した。

結果の一例を既往の報告値と併せて図 2.1-4 に示す。溶解度試験の固液の平衡は 4 週間で到達することが確認されており、図中のプロットは平衡に到達したデータである。固相については目視や液相の酸化還元電位から $\text{NpO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ であると考えられる。

得られた溶解度の pH_c に対する傾きと加水分解定数の文献値 (Neck et al., 2001) から、本実験の pH_c 領域では加水分解を起こしていると考えられる。これらのことを考慮して、得

られた実験データから、(2.1-2)式と加水分解の式を用いて最小二乗法で適合させることにより表 2.1-2 に示す溶解度積を求めた。



このとき加水分解定数は $\log\beta_1^\circ=14.5 \pm 0.2$, $\log\beta_2^\circ=28.3 \pm 0.3$, $\log\beta_3^\circ=39.2 \pm 1$ (Neck et al., 2001) を用い、イオン強度の補正は SIT 法を用いた。また、イオン強度補正の際のイオン相互作用係数 (specific ion interaction coefficients) についても、加水分解種などについては、Neck et al. (2001) の値を用いた。なお、実験結果からイオン相互作用係数 $\epsilon(\text{Np}^{4+}, \text{ClO}_4^-) = 0.75 \pm 0.15$ が求まり、これは文献値 $\epsilon(\text{Np}^{4+}, \text{ClO}_4^-) = 0.82 \pm 0.05$ (Neck et al., 2001) に近い値であった。

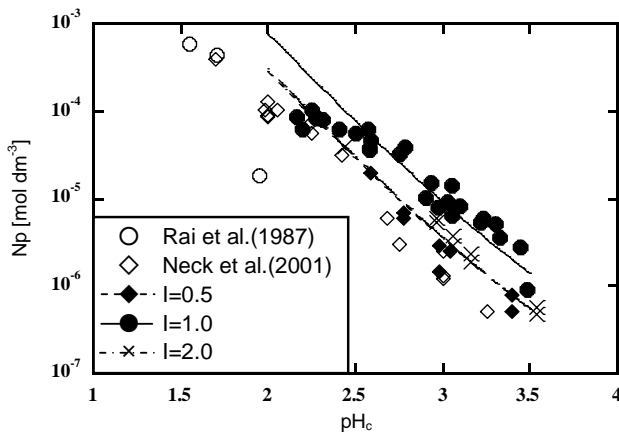


図2.1-4 Np(IV)溶解度のpHc依存性

○, ◇は文献値, ◆, ●, ×および曲線は藤原ほか (2004) による実験値と最小二乗法による適合結果

表2.1-2 溶解度試験から得られたNp(IV) 含水酸化物の溶解度積

Ref.	I(M)	log K _{sp}
Rai et al.(1987)	0.03	-53.3 ± 0.3
	0	-54.5 ± 0.3
Neck et al.(2001)	0.1	-54.4 ± 0.4
	0	-56.4 ± 0.4
藤原ほか(2004)	0.1	-54.5 ± 0.1
	0.5	-53.3 ± 0.2
	1	-52.7 ± 0.4
	2	-53.6 ± 0.2
	0	-56.8 ± 0.3

上述の研究で得られた, U, Np, Pu に対する溶解度積の値 (それぞれ $\log K_{sp} = -53.93 \pm 0.2$, -56.8 ± 0.3 , -57.97 ± 0.24) を、第 2 次取りまとめ以降の他の報告値と併せて、図 2.1-5 に示す。

一連の藤原ほかの研究により報告された値 (Fujiwara et al., 2002, 2003; 藤原ほか, 2004) と、配位子間の反発力をパラメータとして錯生成定数の系統性を考察したモデル (Ligand Repulsion Model) によって求められた Neck らの研究による計算値 (Neck and Kim, 2001) は良い一致を示し、これらは良い直線性を示す。また、これらの値は、Rai et al. (1987) によって示された直線よりも小さな値である。藤原ほかによる報告値を OECD/NEA (Guillaumont et al., 2003) により選定された値 (それぞれ $\log K_{sp} = -54.5 \pm 1.0$, -56.7 ± 0.5 , -58.33 ± 0.52) と比較すると、Np では良い一致を示しているが、U, Pu では、OECD/NEA の方が若干小さな値となっている。今後は、OECD/NEA の更新以降に報告されている藤原ほかの報告値やモデルに基づく値の系統性などを併せて考察し、サイクル機構としての熱力学データベースの更新に反映していく。

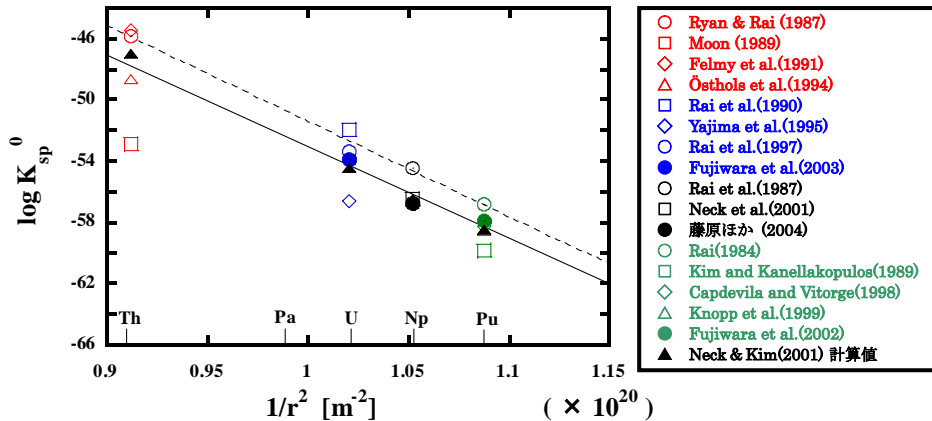


図2.1-5 アクチニドIV価イオンのイオン半径と含水酸化物の溶解度積の関係

点線はRai et al. (1987) によって提案された関係。実線はサイクル機構で求めた溶解度積によって引いた直線

(c) アクチニド IV 価の加水分解定数の取得と評価

前項の溶解度積の導出においては、 $NpOH^{3+}$ などの加水分解種の寄与の見積もり方が、求められる溶解度積の値に影響を及ぼすことから、信頼性の高い加水分解定数の導出が重要な課題として指摘されている。さらに、前述のように中性の加水分解種 $An(OH)_4(aq)$ は支配化学種となり得る重要化学種である。Yui et al. (1999a) では $An(OH)_2^{2+}$, $An(OH)_3^+$ といった加水分解種に関する錯生成定数は、溶解度試験から導出することが困難なこともあり整備できなかった。したがって、第1から第4までの加水分解定数の系統的な検討を行うことは、値の信頼性向上の観点からも重要である。このような認識に基づき、溶媒抽出法を用いIV価のアクチニド元素の加水分解定数の導出を実施することとした。以下に現在までに得られているUに関する成果 (Fujiwara et al., 2003) を示す。なお、Np(IV)についても、溶媒抽出法による加水分解定数導出のための試験を、現在、QUALITYにおいて実施中である。

溶媒抽出実験はUの酸化物 ($^{233}U > 99\%$) を $1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ HClO}_4$ で溶解し、不溶性の残査をろ過したものを原液とした ($10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$)。亜鉛アマルガム法を用いて、この原液からU(IV)を調製した ($1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ HClO}_4$)。有機溶媒はTTAをキシレン溶媒で溶解したものをを用いた。アマルガム法で還元した溶液中のU(IV)を $0.1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ TTA}$ で抽出し、その有機相を用いて逆抽出を行うことで、分配比 (=有機相中の濃度 $[\text{mol dm}^{-3}]$ / 水相中の濃度 $[\text{mol dm}^{-3}]$) を求めた。逆抽出の際に、有機相にキシレンを加えることによりTTA濃度を調整し、水相は HClO_4 と NaClO_4 を加えることによりイオン強度と水素イオン濃度(pH_c)を調整した。両相中のU濃度はU-233のα線を測定することにより求めた。なお、有機相のUは、 $2 \text{ mol dm}^{-3} \text{ HClO}_4$ で逆抽出し、その水相からα線測定用のサンプルを作成した。

結果の一例を図2.1-6に示す。図はpH_cと分配比(D)の相関を示す。log Dの傾きはpH_cの低い領域では4に近いがpH_cが高くなるにつれその傾きは小さくなる。このこととlog DのTTA濃度への依存性を考慮すると、今回の実験では、(2.1-3)~(2.1-7)式で示される反応が支配的に起こっていると考えられる。



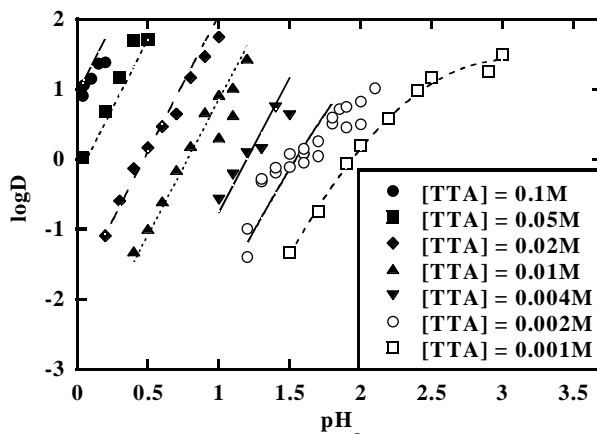


図 2.1-6 U(IV)の分配比と pH_c の依存性

図 2.1-6 の実験データを(2.1-3)～(2.1-7)式に最小二乗法で適合させることにより、平衡定数を求めた。この実験は、異なるイオン強度 ($I=0.1, 0.5$) でも行い、イオン強度 $I=0$ における値を SIT 法により求めた。補正の際のイオン相互作用係数は Grenthe et al. (1992) の値を用いた。導出された加水分解定数を表 2.1-3 中に示す。なお、 β_4° の値については、溶媒抽出法と溶解度の実験で得られた $\beta_1^\circ \sim \beta_3^\circ$ の加水分解定数を用いて、剛体球モデル (Moriyama et al., 1999) により算出した。得られた β_4° の値は加水分解定数の系統性を良く反映した結果となった。

次に、U(IV)のアルカリ領域における溶解度試験結果から、高次の加水分解定数を決定した (Fujiwara et al., 2005)。試験は過飽和法により行った。溶液を還元性条件にするために $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を、イオン強度の調整と水素イオン濃度 (pH_c) の調整に NaOH , HClO_4 を用いた。なお、用いた NaOH 溶液はアルゴンガスによるバブリングの後、水酸化バリウムを用いて炭酸除去を行った。試料水溶液を $25 \pm 1^\circ\text{C}$ で一定期間振とうさせた後、試料水溶液の pH_c および酸化還元電位を測定して液相を分取し、分画分子量 3,000 のメンブランフィルターで遠心ろ過し、ろ液のウラン濃度を ICP 質量分析装置で測定した。

U の溶解度の結果を図 2.1-7 に示す。溶解度は約 4 週間ではほぼ平衡に到達していることが確認された。得られた溶解度は pH_c が大きくなるにつれて高くなる傾向が確認された。 pH_c に対する U の濃度の傾きから溶液中の U の溶存種として高次の加水分解種 ($\text{U}(\text{OH})_5^-$, $\text{U}(\text{OH})_6^{2-}$) が生成していると考えられる。最小二乗法による適合により(2.1-8), (2.1-9)式で表される加水分解定数 β_5 , β_6 を求めた (表 2.1-3)。この際、U(IV)含水酸化物の溶解度積は、Fujiwara et al. (2003) の値を用いた。



また、イオン強度依存性からイオン相互作用係数 $\varepsilon(\text{U}(\text{OH})_5^-, \text{Na}^+) < 0.63$, $\varepsilon(\text{U}(\text{OH})_6^{2-}, \text{Na}^+) = 1.01 \pm 0.72$ を導出した。

アクチニドIV価の $\text{An}(\text{OH})_5^-$, $\text{An}(\text{OH})_6^{2-}$ といった高次の加水分解種の存在については、OECD/NEAのデータ選定においても議論されており、Uに関する初めのデータ選定 (Grenthe et al., 1992) では、 $\text{An}(\text{OH})_5^-$ については、存在するとした仮定の下で限界値が選定されていた。しかし、データ更新の際の議論 (Guillaumont et al., 2003) では、1992年以降に陰イオンの加水分解種の存在を示す新たな証拠は認められていないとして、値の選定を撤回している。Np(IV), Pu(IV)についても、Guillaumont et al. (2003) におけるレビュー実施時点においては、存在を示す信頼性の高い実験データはないとして値を選定していない。前述のように、高pH領域における化学種の同定は、処分システムに普通セメントを用いる場合には重要な課題となる。また、高次の加水分解種の有無はアクチニド元素の錯体化学の観点か

らも議論のあるところであり、溶存化学種の酸化状態の確認やpHによる固相の変化などに留意した実験研究を継続するとともに、錯体構造に関する検討を行い、データの信頼性を高めることが必要であると考えられる。

表2.1-3 U(IV)の加水分解定数

加水分解種 (n)	$\log \beta_n^0$
1	13.71 ± 0.31
2	26.12 ± 0.21
3	36.85 ± 0.36
4	45.44 ± 0.40
5	<48.10
6	48.95 ± 1.01

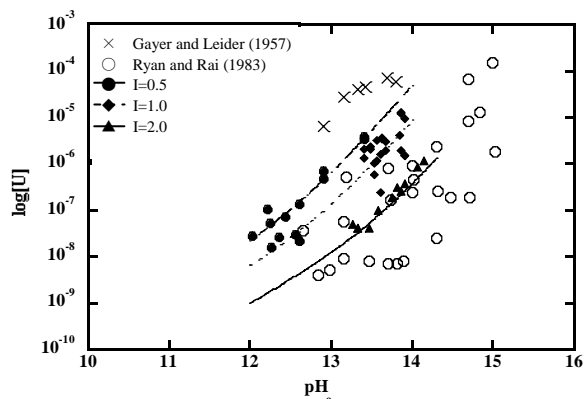


図 2.1-7 U(IV)含水酸化物の強アルカリ領域での溶解度

×, ○は文献値。●, ◆, ▲と曲線は Fujiwara et al. (2005) の実験値と最小二乗法による適合結果

(d) Fe-Se 系熱力学データの確認, FeSe₂による溶解度支配の確認

既往の FeSe₂の熱力学データは、いずれの熱力学データベースにおいても、Mills (1974)において、異なる化学量論比の FeSe 化合物に対する高温での合成熱測定などから導出された値に基づいている。しかしながら、導出に用いられた値の原典が私信であることや、溶解度データから熱力学データを議論したものが存在しなかったなど、データの追跡性、信頼性が必ずしも十分ではなかった。このような状況を考慮し、FeSe₂の熱力学データの確認のために溶解度試験を実施した (Kitamura et al., 2004)。

FeSe₂の安定な pH-Eh 領域は Se(cr)のそれと重複し、Se(cr)の溶解度も十分に低いことから、一般的に行われる初期濃度での飽和側からの実験では準安定相である Se(cr)が沈殿し、FeSe₂による溶解度制限を確認することが困難であった (立川ほか, 1999)。この経験に基づき FeSe₂固相を出発物質とした未飽和溶解度を試みることにした。湿式法および乾式法による合成を行うとともに、反応生成物の選択溶解による精製を試みたが、純粋な FeSe₂固相を準備すること自体が困難であり、Fe₃Se₂および Se(cr)の共存は避けられなかった。この混合試料を用いて FeSe₂と SeO₃²⁻とが平衡となることを期待される高 pH で弱還元溶液条件下で未飽和側からの溶解度試験を実施した。得られた試験溶液の pH, Eh, Fe 濃度および Se 濃度を最も良く説明できる固液の平衡反応とその定数を最小二乗法による適合により探したところ、(2.1-10)式に示す Se(cr)と SeO₃²⁻との平衡を仮定し、平衡定数 (logK⁰) を -59.8 ± 0.5 とする際に試験結果を最も良く説明可能であることが分かった。この値は、既存の熱力学データベース (Yui et al., 1999a) の値 (-61.34) より大きな値であった。



結果として、所期の目的であった FeSe₂の溶解度試験による熱力学データの取得には至っていない。

Se の熱力学データについては Iida et al. (2001) が Se(cr)の還元条件下での溶解度試験から HSe⁻との溶解平衡定数や Se₄²⁻に関する熱力学データの導出を行っているほか、OECD/NEA におけるレビュー結果 (Olin et al., 2005) も最近公開されるなど、情報が集積しつつある。

しかしながら、Olin et al. (2005) においても、Fe-Se 系の固相については生成自由エネルギー (ΔG_f) の選定は行われなかった。

今後は、これらの最新情報に基づき、サイクル機構としての熱力学データベースの更新のためのデータの検討を実施するとともに、 FeSe_2 や FeSe などの Fe-Se 系の固相に関する熱力学データについては、酸化還元条件の制御方法の確立など実験的課題も含めて検討を継続していく。

(ii) 活量係数補正方法に関する情報収集と検討

文献調査により既往の Pitzer パラメータの調査とデータベース化を行った。主要な地球化学元素を含む化学種については、Pitzer (1991) において、1991 年までのパラメータが統合的にまとめられているが、網羅されていない一部のデータについては、Harvie et al. (1984) などに遡ってデータの調査および抽出を行った。また、ランタニド、アクチニドなどに関するパラメータは主として Rai らの研究グループによって報告されている文献から抽出した (吉田ほか, 2004)。最終的に、244 の 2 成分相互作用パラメータ、130 の 3 成分相互作用パラメータを整備した。これらのパラメータは、地球化学計算コード EQ3/6 (Wolery, 1992) で利用可能なフォーマットの電子ファイルとして整備した。

しかしながら、処分環境における溶解度計算において重要な溶存化学種となるアクチニド元素の加水分解種や炭酸錯体の一部、あるいはヒドロキソ炭酸錯体に対するパラメータが欠如していることが明らかとなった。また、一部に Cm(III) に対するパラメータをアナログとして用いて計算を行った Am(III) の溶解度計算結果では、Davies による活量係数補正方法と比較して、イオン強度が 1 を超えない場合は顕著な差異が生じないが、1 を越える場合には大きく異なることが示された (図 2.1-8) (吉田ほか, 2004)。イオン強度 1 を超えないと推定されるわが国の深部地下水水質では、Pitzer のモデルを用いた活量係数補正の重要性は低いと判断される。また、現在 NEA などで行われている熱力学データベース整備においては、SIT 法により、標準状態 ($I=0$) の熱力学データを導出していることから、溶解度計算においても SIT 法による活量係数補正方法が望ましい。しかしながら、汎用の地球化学計算コードには SIT 法による活量係数補正が可能なものが存在しないため、この方法による計算が可能な地球化学計算コードの開発は国際的な課題である。

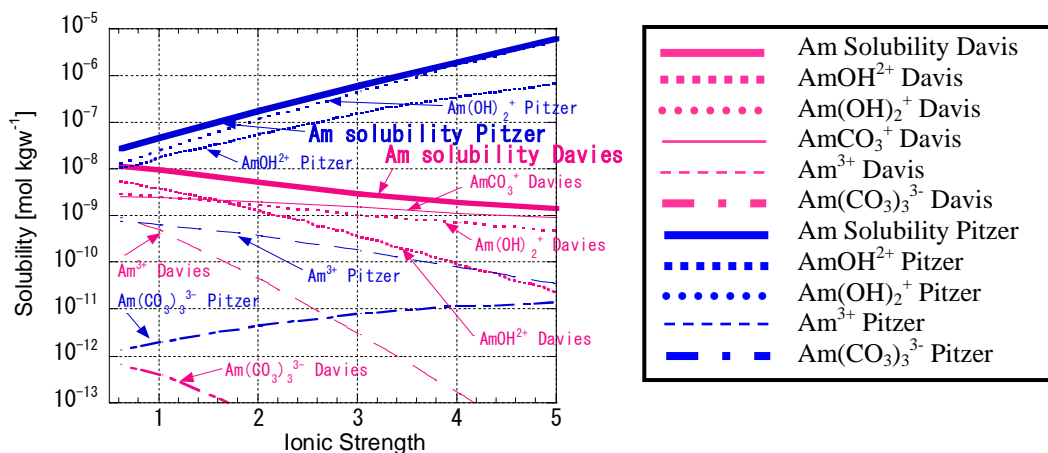


図 2.1-8 イオン強度に対する Am の溶解度計算結果の活係数補正方法依存性

(iii) 熱力学データベースの利用環境の向上および情報提供

JNC-TDB (Yui et al., 1999a) は, PHREEQE (Parkhurst et al., 1980) での読み込みが可能なフォーマットで整備されてきた。しかしながら, 一般的に利用されている地球化学計算コードには PHREEQC (Parkhurst, 1995), EQ3/6 (Thomas, 1992), The Geochemist's Workbench (GWB) (Bethke, 1996) などがあり, これらのコードは, 速度論モデル, 表面錯体反応, 安定相図の作成など PHREEQE にはない機能とともに, それぞれ特徴的な機能を有している。したがって, 作業の目的に応じて計算コードを使い分けることが有効であるが, 同じ熱力学データベースを用いた議論を行うためには, 同一の熱力学データベースがそれぞれの計算コードで読み込み可能なフォーマットで準備されている必要がある。そこで, PHREEQE から PHREEQC および GWB にフォーマット変換するための変換プログラムを作成し (吉田・油井, 2003a), 既存の PHREEQE から EQ3/6 フォーマットへの変換プログラムを併せて利用することで, 上記の各種地球化学計算コードで利用可能なデータベースファイルを準備した。

また, 第2次取りまとめ以降に OECD/NEA により整備された熱力学データベースが公開されたことなどから, 熱力学データベース相互の比較を行えることも必要と判断し, JNC-TDB 以外の熱力学データベースについても同様に複数の地球化学計算コードで利用可能な形態に変換し, JNC-TDB と併せて公開した (吉田・油井, 2003b; 吉田・笹本, 2004; 吉田・柴田, 2004)。公開は電子ファイル添付の技術資料のみならず, サイクル機構の外部公開ホームページから外部の利用者によるダウンロードが可能なシステムとして, 2003年8月1日から運用を開始した (<http://migrationdb.jnc.go.jp/>) (図 2.1-9)。なお, 同外部公開ホームページでは, 収着データベースシステムのダウンロードおよび Web 上での簡易データ検索も可能である (2.2 節参照)。2005年7月時点で, 国内外の 300 名以上が利用者登録済みである。



図 2.1-9 サイクル機構 熱力学・収着データベース外部公開ホームページ初期画面

本システムを利用することにより, NEA におけるデータ更新結果も容易に確認することができる。図 2.1-10 には 1992 年に NEA により整備された U の熱力学データ (Grenthe et al.,

1992) を利用して作成した pH-Eh 図と、2003 年のデータ更新版 (Guillaumont et al., 2003) による pH-Eh 図を比較して示す。

なお、この図において、データ更新版による pH-Eh 図では、U(V)の UO_2^+ が比較的広い領域で現れるなど、従来の知見と整合しない点もあり、NEA による選定データといえども、データの利用にあたっては、利用者によるデータの十分な検討が必要であることが示唆された。

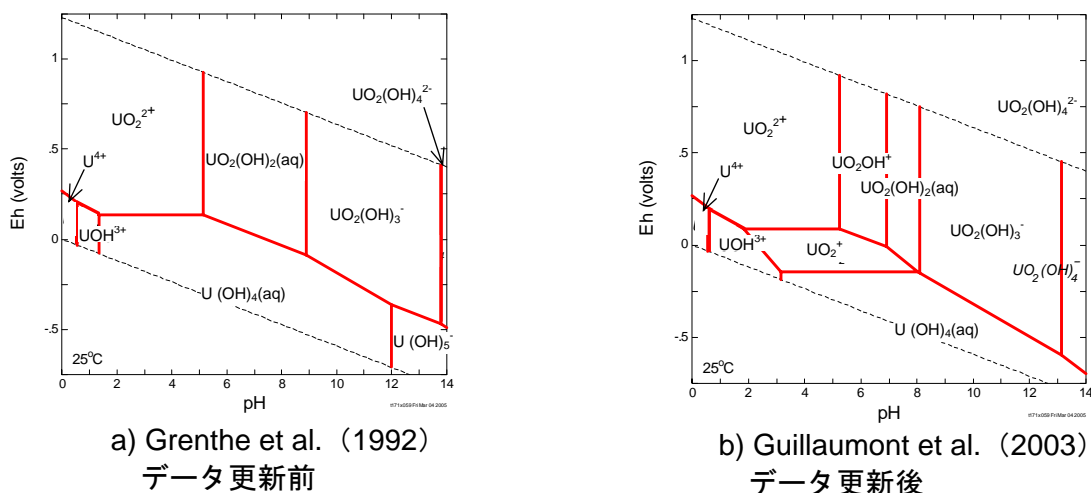


図 2.1-10 サイクル機構 熱力学データベースシステムの利用例
GWB 形式の NEA 熱力学データのダウンロードによる、データ更新前後の熱力学データの相互比較
[U]= 10^{-10} ，過飽和となる固相は図から削除し、溶存化学種のみを表示

(3) 結論

第 2 次取りまとめ以降の研究により、主に以下の成果が得られた。

- 重要元素の熱力学データ取得と評価

溶解度設定値に影響を与え、安全評価上重要であるにも拘らず、国際的にも情報が不足していることにより信頼性が問題とされていたアクチニド IV 価のヒドロキソ炭酸錯体に関する新規データを取得し、データの拡充による熱力学データの信頼性の向上を図った。さらに、アクチニド IV 価の含水酸化物固相の溶解度積および加水分解定数に関するデータを取得し、これらデータの傾向性や系統性を確認した。このように、第 2 次取りまとめ以降、QUALITY の利用などにより、サイクル機構において体系的な熱力学データの取得が可能となった。さらに、これらの成果により、安全評価の観点からは、アクチニド IV 価の重要化学種に対する熱力学データの不確実性やそれに伴う溶解度設定における不確実性の議論の基礎となる情報を充実させることができた。

- 活量係数補正方法に関する情報収集と検討

現状で入手可能な Pitzer モデルに関するパラメータを調査し、地球化学計算コード (EQ3/6) で利用可能な電子ファイルとして整備した。また、整備の結果から、現状では、同モデルを用いた溶解度計算を実施するには、パラメータが十分ではなく、かつイオン強度 1 を超えないと推定されるわが国の深部地下水水質では、同モデルを用いた活量係数補正の重要性は低いと判断された。また、現在 OECD/NEA など実施されている熱力学データベース整備において利用されている SIT 法による活量係数補正が可能な汎用性のある地球化学計算コードが存在しないため、この方法による計算が可能な地球化学計算コードの開発は国際的な課題である。

- 熱力学データベースの利用環境の向上および情報提供

JNC-TDB および OECD/NEA により整備されている熱力学データベースなどを各種地

球化学計算コードで利用可能なフォーマットの電子ファイルとして作成し、これらのデータベースファイルを外部公開ホームページ上で公開、配布するシステムを構築し、国内外への公開を開始した。2005年7月時点で国内外の利用登録者数は300名を越えた。利用者は複数の熱力学データベースの内容を容易に比較することが可能となり、今後の熱力学データの検討においても有効なツールとして利用することができる。また、情報の透明性・追跡性を確保するとともに、将来にわたって、事業の実施主体や安全規制側が共通に情報を利用できるシステムの基礎を構築できたものとする。

(4) 今後の課題

核種移行評価において、熱力学データは最も重要な基本情報のひとつである。したがって、最新で最も適切と評価されている熱力学データがデータベースとして整備され、その値の選定根拠や利用上の留意点とともに、将来にわたって常に誰でもが利用できる形態の情報として整備されていることが肝要である。サイクル機構は、このような観点から、最新のデータを用いた更新や公開を念頭においたデータベース開発を目標としている。

このためには、国際的な動向調査や情報収集、必要なデータの自らの取得、データの評価・選定によるデータベースの更新およびその実施体制の確立、データの公開システムの確立のすべてが必要であり、課題となる。

このうち、データ取得に関しては、今後も安全評価の観点から重要であり、データの充足やデータの再評価が必要であると判断されるデータについては、**QUALITY**などを有効に利用しながらデータ取得を継続していく。具体的な課題としては、現在継続中のアクチニドIV価の含水酸化物固相の溶解度積、アルカリ領域での高次の加水分解種の存在の有無を含めた加水分解定数の系統的な信頼性確認などのためのデータ取得を継続する。また、重要元素であるSeに関する熱力学データの取得を実施する。さらに、第2次取りまとめ時点において課題とされ、未着手の課題（たとえば、ケイ酸系での熱力学データの整備、温度影響の確認）については、情報収集による検討の後、必要に応じてデータ取得を実施する。

第2次取りまとめから5年が経過しサイクル機構が自ら取得するデータのみでなく、国内外の研究機関により得られたデータが充足しつつあること、また、OECD/NEAにおける国際共同プロジェクトPhase IIにおける選定データがほぼ出揃ったことなどから、平成17年度より、サイクル機構熱力学データベースの更新作業に着手する。本作業では、OECD/NEAによるデータベース整備結果を参考としつつ、値が選定されていない重要化学種の取扱い、データが欠如している場合の化学アナログの利用など、OECD/NEAにおける検討を補完しつつ作業を進める予定である。なお、更新においては、活量係数補正については、OECD/NEAに従いSIT法に従うことを基本とする予定である。

本来、熱力学データベースの整備作業は、データ選定などの作業の客観性や科学的妥当性を担保するために、学会などの学術団体の下に専門家が集結し実施すべきとの意見もあり、わが国において、事業、規制の両方に利用可能な熱力学データベースが整備されるような体制を確立することも重要な課題であり、その中でサイクル機構は適切な役割を担うべきと考えられる。

このためにも、現在までに構築した情報の公開、配布システムの整備を継続し、データベースユーザからの問い合わせなどのフォローを行う体制を整えていく。

2.2 収着・拡散データベースの整備

(1) はじめに

安全評価において、緩衝材および岩石中での核種の収着・拡散現象は、核種の移行を遅延する重要な現象である。これらの現象は地下水や緩衝材間隙水の水質、その中での核種の化学形の影響も受ける。安全評価においては、想定される地質環境を考慮し、核種の収着・拡散に関するパラメータを設定する必要がある。したがって、収着・拡散データベースの整備は、安全評価におけるパラメータ設定の基盤となる研究である。

第2次取りまとめにおいて、緩衝材および岩石中での収着・拡散現象に関するパラメータは、バッチ式収着試験や拡散試験から得られる実測値に基づき設定された。設定にあたっては、既存文献のデータ調査を行い、バッチ式収着試験データと国内の岩石に対する拡散試験データをもとに、それぞれ収着データベース(澁谷ほか, 1999)および拡散データベース(Sato, 1999)として整備し、それを利用した。

第2次取りまとめの段階で整備した収着・拡散データベースでは、堆積岩での海水系地下水環境やアルカリ環境での収着・拡散データの拡充、膨大な既存データの取得方法や取得条件などデータの信頼度に関する情報の整理も求められていた。このような状況を踏まえ、第2次取りまとめ以降は、バリア性能に大きく影響する可能性のある核種について、国内外の研究機関における研究を広く調査し、収着・拡散の既存データを拡充しデータベースを更新することや、データ取得方法の標準化について検討することを課題とした(核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会, 2000)。

収着・拡散データベースの整備に関して、事業の実施主体では、最新の科学的知見の安全評価への適切な反映を図るため、最新のデータを取り込んだデータベースの更新を求めている(原子力発電環境整備機構, 2004)。一方、安全規制の観点からは、データの信頼度・客観性が確保されたデータベース開発を行うとともに、評価が過度に保守的にならないようなパラメータを検討することが求められている(総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会, 2003)。

収着データベースの整備に関する国内外の研究動向としては、OECD/NEAで国際的な収着データベースの整備が行われていたが現在は中断されており、各国でのプロジェクトごとに安全評価に用いるためのデータベース整備が行われている(たとえば, Bradbury and Baeyens, 2003)。また拡散データベースについては、サイクル機構が整備しているような幅広い地質環境を対象とした観点で整備されたデータベースは、現在、ほかには存在しない。

サイクル機構では、上述した第2次取りまとめ以降の課題に対し、データベースの拡充・更新、第2次取りまとめの段階で不足していたデータの取得、データベース整備・データ取得を通じて得られた各種の実験方法の長所・短所や実験上留意すべき点などに関する知見に基づくデータ取得方法の標準化に資する基盤情報の整理とデータの信頼度に関する検討、データベースの幅広い公開および情報提供を行うため、以下の個別課題を設定した。

- ・文献調査による最新のデータ収集および収着データベースの更新
- ・堆積岩での海水系地下水環境、アルカリ環境におけるデータの拡充
- ・データ取得方法の標準化に資する基盤情報整備
- ・収着データの信頼度付与のための手法開発
- ・データベースの公開および情報提供

(2) 研究内容

(i) 文献調査による最新のデータ収集および収着データベースの更新

第2次取りまとめにおいて、人工バリアおよび天然バリアの放射性核種の遅延能力を評価する上で重要となる核種の分配係数 (Kd) を取りまとめたデータベース (JNC-SDB) を整備した (澁谷ほか, 1999)。JNC-SDB の整備後、約5年が経過しており、その間に収着に関する新たなデータが多数報告されている。そこで、JNC-SDB 整備以降の最新の収着データを収集し、収着データベースを拡充・更新するため、国際的な原子力文献情報システムである INIS (International Nuclear Information System) を用いて、1998年～2003年の間に公開された文献を対象に調査・データ収集を行い、JNC-SDB の更新作業を行なった (陶山・笹本, 2004)。表 2.2-1 に更新した19元素に対する更新後のデータ数を示す。

表 2.2-1 更新した19元素に対する更新後の JNC-SDB 内のデータ数
(括弧内の数字は増加したデータ数を示す)

元素	岩石	粘土	その他	合計
Ag	13(9)	6(6)	0(0)	19(15)
Am	761(106)	397(24)	300(65)	1,458(195)
Ba	237(18)	8(0)	0(0)	245(18)
Co	183(10)	62(11)	40(4)	285(25)
Cm	35(6)	12(0)	0(0)	47(6)
Cs	1,626(115)	661(59)	472(65)	2,759(239)
Eu	250(0)	31(0)	37(28)	318(28)
Fe	41(9)	6(6)	0(0)	47(15)
I	74(0)	49(0)	123(51)	246(51)
Mn	114(10)	6(6)	36(0)	156(16)
Mo	15(9)	7(7)	0(0)	22(16)
Np	867(143)	599(61)	436(16)	1,902(220)
Pb	54(10)	205(2)	42(0)	301(12)
Pu	1,029(18)	326(5)	268(21)	1,623(44)
Se	499(0)	86(1)	445(39)	1,030(40)
Sr	1,077(80)	368(80)	443(48)	1,888(208)
Tc	579(2)	230(7)	287(0)	1,096(9)
U	1,229(23)	866(12)	321(28)	2,416(63)
Zn	9(9)	7(7)	0(0)	16(16)

更新前後での JNC-SDB に含まれる Np の分配係数データのヒストグラムの比較例を図 2.2-1 に示す。データベース更新後は、この例の Np をはじめ、Cs, Sr, Am などのデータが増加し、Kd の頻度分布の傾向がより明確になった。

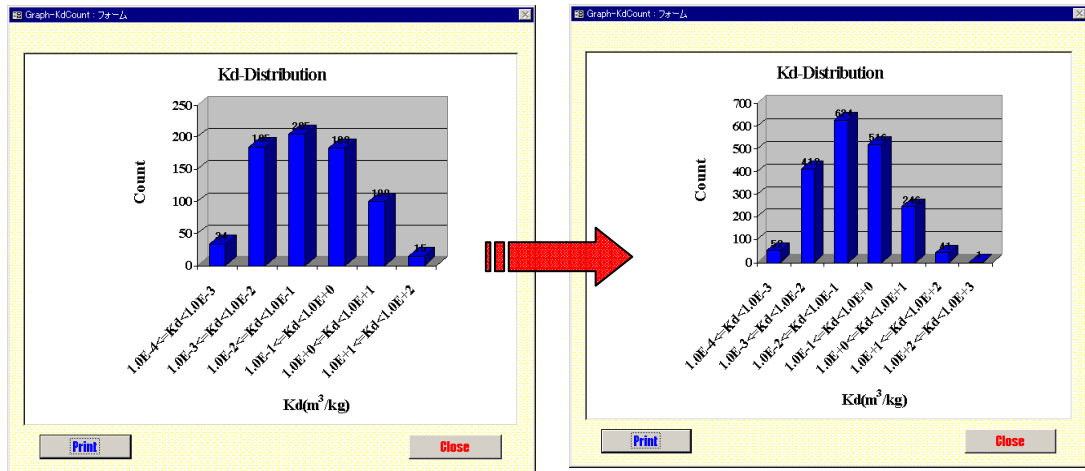


図 2.2-1 更新前後での分配係数データのヒストグラムの比較例
(Np 分配係数の全データ, 左図: 更新前, 右図: 更新後)

同様に、更新前後での JNC-SDB を使い、データの増加に伴い、収着メカニズムから推測されるような K_d のイオン強度依存性や pH 依存性などが確認されるかどうかについても検討してみた。たとえば Cs の場合、 K_d への影響は溶液の pH よりも溶液中の主要陽イオン組成の方が大きいと考えられるため、一般に溶液のイオン強度が増加すると競合するイオンが増加し、 K_d が小さくなる傾向があると推測される。一方、アクチニド元素である Am や Np の場合、溶液の pH により支配的な化学種が異なるとともに、固相の表面特性との関係で収着挙動が支配されるような表面錯体反応支配の収着メカニズムが想定されるため、 K_d の pH 依存性があると推測される。図 2.2-2 に一例として、JNC-SDB を用いて Cs の砂質岩に対する K_d のイオン強度依存性について調べた結果を示す。また、図 2.2-3 には、JNC-SDB を用いて Am の結晶質岩（酸性）に対する K_d の pH 依存性について調べた結果を示す。これらの図から、それぞれの元素に対し、一般的に考えられているような収着メカニズムに基づく K_d の傾向が JNC-SDB を用いたデータ検索結果からも確認され、データベースに含まれるこれらの元素に対するデータの妥当性が示された。

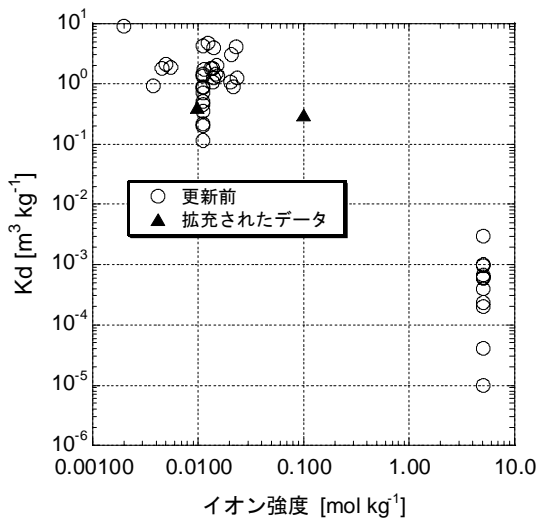


図 2.2-2 Cs の砂質岩に対する K_d のイオン強度依存性

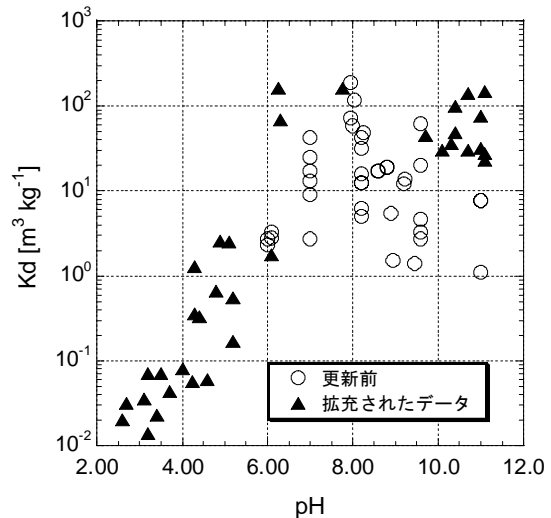


図 2.2-3 Am の結晶質岩（酸性）に対する K_d の pH 依存性

また、更新前後の JNC-SDB を用いて得られる分配係数データのヒストグラムに対して、第2次取りまとめにおける Kd 設定値がどのような領域に位置するかを確認した。一例として最もデータが拡充された Cs を対象とし、泥質・凝灰質岩での降水系地下水環境のケースについて検討した結果を示す(図 2.2-4)。図 2.2-4 に示されるように、更新前後における Cs の Kd 頻度分布の傾向には大きな違いは生じておらず、第2次取りまとめにおける Kd 設定値 ($Kd=0.1 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$) は、更新後の JNC-SDB を用いた分配係数データのヒストグラムにおいても低めの Kd の領域に含まれる値であることが分る。ただし、更新後の JNC-SDB ではデータ数は少ないものの第2次取りまとめの設定値より1桁小さい $Kd=0.01 \sim 0.1 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ の領域に含まれるデータも若干増加している。今後もデータを拡充し、この領域に含まれるデータが大幅に増える可能性があるかどうか確認する必要がある。

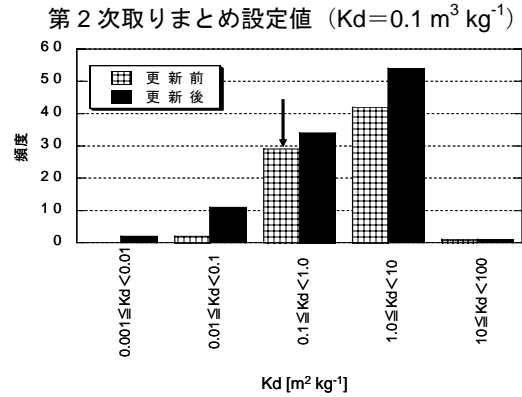


図 2.2-4 更新前後での JNC-SDB による分配係数データのヒストグラムと第2次取りまとめにおける Kd 設定値との関係(泥質・凝灰質岩での降水系地下水環境における Cs の Kd)

(ii) 堆積岩での海水系地下水環境、アルカリ環境におけるデータの拡充

第2次取りまとめの段階で不足していた堆積岩(砂岩類, 凝灰岩・泥岩類)での海水系地下水環境, およびアルカリ環境におけるデータの拡充を中心にデータ取得を進めてきた。これまでに、ベントナイトおよび堆積岩(砂岩および泥岩)に対する海水系地下水での Cs の収着データの取得(北村ほか, 2004), 砂岩および凝灰岩に対する海水系地下水環境, アルカリ環境での Sn, Pb, Th の収着データの取得(中澤ほか, 2004), 幌延の深地層の研究施設計画で取得された地下水および岩石(泥岩)の試料を用いた Cs および Se の収着データ取得(Xia et al., 2004, 2005)などを行い, データを拡充した。なお収着データの取得とともに, 収着現象の理解を進めるため, 溶液条件を変えた収着試験の結果をもとに化学種分配と対応させた収着挙動の解釈(北村・戸村, 2003)や収着モデルによる解釈(Xia et al., 2004, 2005)も実施している。これらについては 3.3.3 項で述べる。

JNC-SDB の更新前後でのデータ充足状況の変化を図 2.2-5 にまとめる。第2次取りまとめの段階に比べ, データ数の

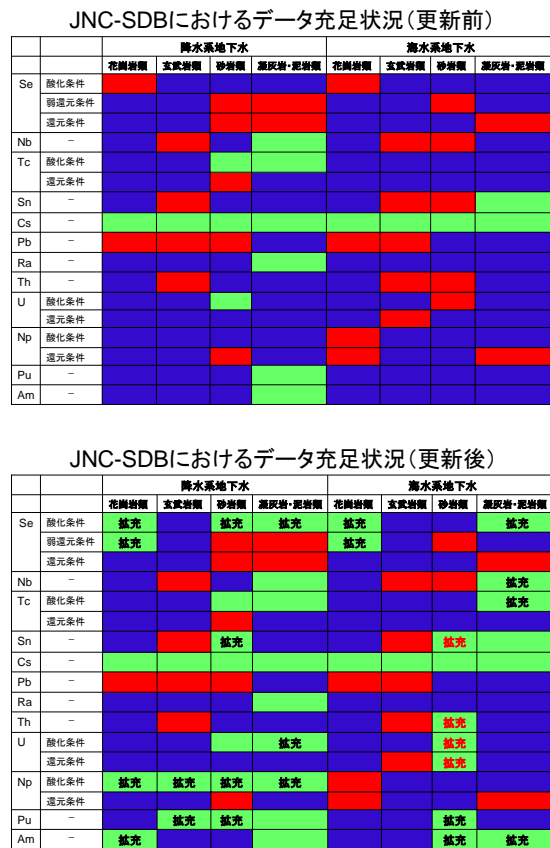


図 2.2-5 JNC-SDB の更新前後でのデータ充足状況の変化(緑: データ数多い, 青: 一部データ不足, 赤: データ不足, 赤字の拡充はアルカリ環境でのデータ増加を示す)

増加は明らかであるが、まだ、堆積岩での海水系地下水環境、およびアルカリ環境に対するデータは十分とはいえず、今後も引き続き、データの拡充を図る必要がある。

(iii) データ取得方法の標準化に資する基盤情報整備

分配係数は、測定条件により、その値は大きく異なるため、異なる研究者により取得されたデータの信頼度や再現性、適用範囲の判断を行えるような基本的な測定手順が規定されることが望ましい。このような要求に対し、社団法人日本原子力学会標準化委員会では、深地層処分バリア材を対象とした収着分配係数の測定方法の基本手順を提案した（社団法人日本原子力学会、2005）。サイクル機構では、同委員会の審議に加わるとともに、基本手順書の作成に寄与した。このような基本手順書が制定されたことにより、今後、わが国における収着データの標準化が加速されると考えられる。なお、今回制定された基本手順書は、分配係数について「再現性が高く相互比較が可能な値を得る」ことが目的とされており、安全評価のための分配係数を得る場合には、この基本手順書だけでなく、地質環境条件、核種移行経路、核種の化学形態などを考慮した十分な検討、評価も必要である（社団法人日本原子力学会、2005）。このような検討、評価にあたっては、たとえば実際の地質環境条件が設定できる幌延の深地層研究施設計画を対象に、そこで得られた地下水や岩石試料をもとに K_d 設定のためのデータ取得手法を開発していくことが重要である。

(iv) 収着データの信頼度付与のための手法開発

JNC-SDB に含まれる放射性核種のベントナイトおよび岩石に対する収着データは、2 万件を超える（陶山・笹本、2004）。このような膨大なデータを有する JNC-SDB には、様々な実験条件・手法で得られたデータが含まれているため、全てのデータを同一の条件や信頼度で評価することはできない。そのため、個々のデータに対し、データの信頼度を付与し、信頼度に応じたデータの評価を行う必要がある。

そこで、収着データの信頼度を評価する際に、どのような実験条件などを考慮すれば良いか（たとえば、初期濃度、固液分離方法など）を検討し、個々の収着データに対し信頼度を付与するための便宜的な指標を設定した（齋藤ほか、2005）。今回、設定した指標は以下のとおりである。

(a) 報告書などの記述（実験方法、実験条件など）の網羅性の確認

JNC-SDB の入力カラムに含まれる「固相、溶液組成、雰囲気、温度、pH・酸化還元状態（制御方法を含め）、核種初期濃度、固液分離方法」について、必要な情報がすべて入力されているかどうか（情報の入力の有無で評価）、また、 K_d がどのような形で報じられているか（表形式なのか図式なのか。図の場合、線形なのか対数なのか。）に応じてデータをランク付けする。この指標では、必要な情報の有無に基づくデータのスクリーニングを行った上で、 K_d の報告形態に基づくクラス 1~6 のランク付けを行う。たとえば、表形式で K_d の値が与えられている場合、相対的に信頼度が一番高くなる。一方、 K_d をグラフから読み取らなければならない場合、相対的に信頼度が低くなり、ランクが下がる。信頼度は、クラス番号が小さいほど相対的に高くなる。

(b) 実験方法・実験条件などに基づく個々の収着データの信頼度の確認

「固相、pH の調整・制御、酸化還元状態の制御、最終溶液組成、温度、固液比・粒子サイズ、収着率、核種初期濃度、固液分離方法、反応時間、攪拌方法、反応容器、誤差評価」について、これらに関する情報の充足、手法の適切さについて確認し、データをランク付けする。たとえば K_d の信頼度評価において核種の沈殿による影響の有無を確認する上で重要な項目である核種初期濃度に対しては、

- ・レベル A：核種濃度が溶解度により制限されない場合または初期濃度が明らかに溶解度以下の場合
- ・レベル B：初期濃度は明らかに溶解度以下であるが溶解度の 1/5 以上の濃度の場合

- ・レベル C/D : 核種の初期濃度が低く溶解度以下と考えられるが、溶解度制限固相に関する熱力学データがなく、溶解度が確認できない場合
などの判断基準をもとに 3 つにランク付けを行う。なお核種濃度が溶解度を超過していることが明らかな場合、信頼度評価の対象から除外する。

(c) データ相互間の整合性の観点からのランク付け

収着メカニズムに基づけば、 K_d にはイオン強度依存性や pH 依存性のようなデータ取得条件に応じた傾向が認められると考えられる。しかしながら、JNC-SDB に含まれるデータには、ある一定の条件でのみ取得された K_d が多く、収着メカニズムから推察されるような傾向と一致した整合性のあるデータかどうか判断できない (たとえば、pH 7 の条件でのみ K_d が得られており、 K_d の値に幅があるような場合)。そこで、 K_d に傾向が認められるようなデータとの比較により、データ相互間の整合性について確認し、データをランク付けする。この指標では、たとえば K_d に pH 依存性がある核種の場合、比較的幅広い pH 条件で K_d が取得され、pH に対する傾向が得られており信頼度が高いと考えられるデータとの比較をもとに信頼度が評価され、レベル A (信頼度が高い)、レベル B (信頼度がやや劣る)、レベル C/D (信頼度が低い) の 3 つにランク付けを行う。

信頼度の評価にあたっては、(a)~(c)の各指標に対するランク付けの結果を総合的に判断して行う。これらの指標をもとに、いくつかの放射性核種を例に JNC-SDB に含まれる収着データに対する信頼度評価を試験的に行った。一例として、Pu に対する信頼度評価の指標(c)における検討結果について述べる (図 2.2-6)。

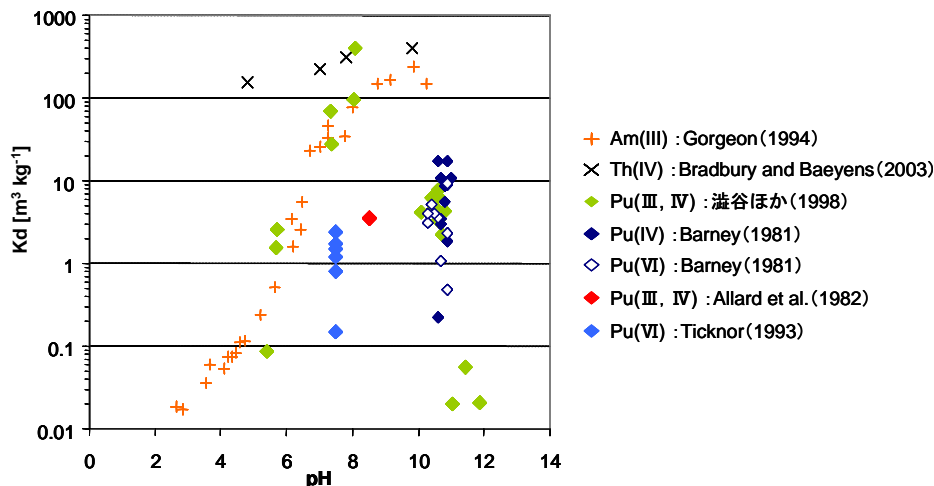


図 2.2-6 データ相互間の整合性の観点に基づく K_d の信頼度評価の一例
(K_d の pH 依存性の傾向をもとにした他のデータとの整合性に関する検討例)

JNC-SDB に含まれるベントナイトに対する Pu の収着データとして、澁谷ほか (1998) , Barney (1981) , Allard et al. (1982) , Ticknor (1993) が挙げられた。澁谷ほか (1998) は Pu(III)および Pu(IV) , Barney (1981) は Pu(IV)および Pu(VI) , Allard et al. (1982) は Pu(III)および Pu(IV) , Ticknor (1993) は Pu(IV)のデータとして報告している。これらのデータは、澁谷ほか (1998) を除くと、各々、ある特定の pH 条件で K_d を求めたものであり、また同一の pH 条件においても K_d の値に幅があり、データの信頼度評価が難しい。そこで、Pu(IV)のアナログとして、Am(III)や Th(IV)で比較的幅広い pH 条件で K_d が取得され、pH に対する傾向が得られており、収着メカニズムからもデータの信頼度が担保される Gorgeon (1994) や Bradbury and Baeyens (2003) のデータとの比較をもとに、データ相互間での整合性を確認し、データの信頼度評価を行った。

その結果、澁谷ほか (1998) のデータについては、pH 6~8 の領域のデータは Gorgeon (1994) の結果と同様な傾向を示しており、その信頼度は高い (レベル A) と判断された。

一方、澁谷ほか（1998）で $\text{pH} > 10$ の領域のデータは、Gorgeon（1994）のデータからも K_d が小さくなる傾向が認められ、傾向としては問題ない可能性があるが、 pH 6～8 の領域と同レベルの信頼度で評価することは困難なため、やや信頼度が劣る（レベル B）と判断された。Barney（1981）の Pu(IV) のデータは、澁谷ほか（1998）の Pu(III) および Pu(IV) のデータと似たプロットを示しており、Pu(IV) については、澁谷ほか（1998）と同様にやや信頼度が劣る（レベル B）と判断された。一方、Barney（1981）の Pu(VI) のデータについては、Pu(IV) と同様な領域にプロットされており、今回の検討では、信頼度は低い（レベル C/D）と判断した。また、Allard et al.（1982）のデータも他のデータとの整合性がとれないことから信頼度は低い（レベル C/D）と判断した。Ticknor（1993）のデータについては、澁谷ほか（1998）のデータと比較すると、同程度の pH 条件において、やや低い K_d を示すため、信頼度はやや劣る（レベル B）と判断された。

今回実施した信頼度評価の試行により、設定した指標をもとに判断を下す場合、作業により判断に差異が生じるケースが認められた。この原因として、収着に関する基礎的な情報量が作業により異なったことも挙げられたが、主に各指標におけるランク付けのための判断基準に関する記述の曖昧さであった。そのため、今後、信頼度を付与するための各指標について、作業ごとに判断が異ならないように判断基準に関する記述を改定するとともに、信頼度評価手法の適用性について JNC-SDB を用いて、さらに検討する必要がある。

(v) データベースの公開および情報提供

サイクル機構では、2003 年 8 月 1 日より、第 2 次取りまとめで用いられた熱力学データベースおよび収着データベースを中心に、サイクル機構で開発・整備したデータベースを外部公開ホームページから利用者がダウンロード可能なシステムの運用を開始した（2.1 節参照）。収着データベース（JNC-SDB）については、(i) で述べた収着データベースの更新の結果も上記ホームページ上で公開するとともに、ホームページ上でデータ検索機能を利用できるシステム（JNC-SDB Web）を開発し公開した（図 2.2-7）。JNC-SDB Web システムでは、「Element」、「Solid phase group」、「Reference」の各項目から検索したい内容を選択することで、ホームページ上でデータ検索を行うことができる。なお、JNC-SDB および JNC-SDB Web の利用にあたっては、ユーザー登録が必要である。



図 2.2-7 JNC-SDB Web システム
(左図：データ検索画面、右図：データ検索結果画面)

(3) 結論

第2次取りまとめ以降に公開された最新のデータを取り込み、データベースを更新・公開した。これにより、データの不足している堆積岩での海水系地下水環境、およびアルカリ環境下でのデータが一部拡充され、第2次取りまとめに比べると、より幅広い地質環境に対応したデータ設定にも対応できるようになった。更新後のJNC-SDBを用いても第2次取りまとめにおけるKd設定値はKdヒストグラムの中で低めの領域に位置することを確認した。また、収着データ取得の標準化手法が提案され、データの信頼度・客観性を確保するための基盤情報が整備された。さらに基盤情報整備の一環として、収着データベースを用いたデータの信頼度評価に関する手法開発に着手し、信頼度を評価するための指標を作成した。JNC-SDBの利用促進を図るため、外部公開ホームページ上での国内外への公開を開始し、2005年7月時点で国内外の利用登録者は300名を超えた。収着データベース検索機能の一部を外部公開ホームページ上で試行することができるJNC-SDB Webシステムの開発を行った。

(4) 今後の課題

収着データベースに関しては、今後も文献調査を継続し、最新のデータを取り込み、データベースの更新・公開を行っていく必要がある。また、収着データの取得にあたっては、標準化手法に準拠し、今後も継続してデータの不足している堆積岩での海水系地下水環境、およびアルカリ環境下におけるアクチノイド元素やSeなどを対象にデータ取得を行い、データを拡充していく必要がある。拡散データベースについては、拡散データの拡充と並行し、ホームページ上でのデータベース公開を行っていく予定である。なお、収着および拡散のデータの拡充にあたっては、実際の地質環境条件として幌延の深地層の研究施設計画で得られた地下水や岩石試料を用いたデータ取得を優先して行うとともに、安全評価手法の適用性確認の一環として、安全評価で必要となる分配係数の設定手法についても検討を進める。さらに、基盤情報整備の一環として着手したデータの信頼度評価手法については、今回設定した指標の中の判断基準に関する記述を見直し、その適用性を確認した後、収着データベースの各データに対して信頼度を付与していく予定である。

参考文献

Allard, B., Olofsson, U., Torstenfelt, B., Kipatsi, H. and Andersson, K. (1982): "Sorption of actinides in well-defined oxidation states on geological media", Material Research Society Symposium Proceedings, Vol.11, pp.775-782.

東侍郎, 柴田雅博, 油井三和, 澁谷朝紀, 能登屋信, 吉田泰 (1999): "地層処分研究開発第2次とりまとめにおける放射性元素の溶解度評価", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-071.

Barney, G.S. (1981): "Radionuclide Reactions with Groundwater and Basalts from Columbia River Basalt Formations", Rockwell International Corp., Richland, WA (USA). Rockwell Hanford Operations Northwest Regional American Chemical Society Meeting. Bozeman, MT, USA. 17- 19 Jun 1981, RHO-SA-217, p.40.

Berner, U. (2002): "Nuclear Energy and Safety Research Department Laboratory for Waste Management. Project Opalinus Clay: Radionuclide Concentration Limits in the Near-Field of a Repository for Spent Fuel and Vitrified High-Level Waste", Paul Scherrer Institut, PSI Ber. 02-22.

Bethke, C. M. (1996): Geochemical reaction modeling, Oxford University Press, ISBN 0-19-509475-1.

Bradbury, M. H. and Baeyens, B. (2003): "Near-field sorption data bases for compacted MX-80 bentonite for performance assessment of a high-level radioactive waste repository in opalinus clay host rock", National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra), NTB 02-18.

Capdevila, H. and Vitorge, P. (1998): "Solubility Product of $\text{Pu}(\text{OH})_{4(\text{am})}$ " Radiochimica Acta, Vol.82, pp.11-16.

Eriksen, T. E., Ndalamba, P., Cui, D., Bruno, J., Caceci, M. and Spahiu, K. (1993): "Solubility of the Redox-sensitive Radionuclides ^{99}Tc and ^{237}Np under Reducing Conditions in Neutral to Alkaline Solutions", Effect of Carbonate, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), TR 93-18.

Felmy, A. R., Rai, D. and Mason, M. J. (1991): "The Solubility of Hydrated Thorium(IV) Oxide in Chloride Media: Development of an Aqueous Ion-Interaction Model", Radiochimica Acta, Vol.55, pp.177-185.

Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T. and Moriyama, H. (2002): "Solubility Product of Plutonium Hydrated Oxide and Its Ionic Strength Dependence", Radiochimica Acta, Vol.90, pp.857-861.

Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T. and Moriyama, H. (2003): "Determination of uranium(IV) hydrolysis constants and solubility product of $\text{UO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ ", Radiochimica Acta, Vol.91, pp.345-350.

藤原健壯, 小原幸利 (2004): "Np(IV)水和酸化物の溶解度積(II)", 日本原子力学会「2004年秋の大会」予稿集, F63, p.523.

藤原健壯, 小原幸利, 森孝司 (2004): "Np(IV)水和酸化物の溶解度積", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-021.

Fujiwara, K., Yamana, H., Fujii, T., Kawamoto, K., Sasaki, T. and Moriyama, H. (2005): "Solubility of Uranium(IV) Hydrated Oxide in High pH Solution under Reducing Conditions", Radiochimica Acta, Vol.93, pp.347-350.

Gamsjäger, H., Bugajski, J., Gajda, T., Lemire, R. and Preis, W. (2005): “Chemical Thermodynamics Series Volume 6: Chemical Thermodynamics of Nickel”, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Amsterdam, North - Holland.

Gayer, K. M. and Leider, H. (1957): “The solubility of uranium(IV) hydroxide in solutions of sodium hydroxide and perchloric acid at 25°C”, *Can. J. Chem.* Vol.35, pp.5-7.

原子力発電環境整備機構 (2004): “高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性”, 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-04-01.

Gorgeon, L. (1994): “Contribution a la Modelisation Physico-Chimique de la Retention de Radioelements a vie Longue par des Materiaux Argileux”, THESE de DOCTORAT de l'UNIVERSITE PARIS 6.

Grenthe, I., Fuger, J., Konings, R. J. M., Lemire, R. J., Muller, A. B., Nguyen-Trung, C. and Wanner, H. (1992): “The Chemical Thermodynamics of Uranium”, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Amsterdam : North - Holland.

Grenthe, I. and Puigdomenech, I. (1997): “Modelling in Aquatic Chemistry”, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Paris (1997).

Guillaumont, R., Fanghänel, Th., Neck, V., Fuger, J., Palmer, D. A., Grenthe, I. and Rand, M. H. (2003): Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium, Elsevier, B. V., Amsterdam.

Harvie, C. E., Moller, N. and Weare, J. H. (1984): “The prediction of mineral solubility in natural waters: The Na-K-Mg-Ca-H-Cl-SO₄-OH-HCO₃-CO₃-H₂O system to high ionic strengths at 25degC”, *Geochimica Cosmochimica Acta*, Vol.48, pp.723-751.

Hummel, W., Berner, U., Curti, E., Pearson, F. J. and Thoenen, T. (2002): “Nagra/PSI Chemical Thermodynamic Data Base 01/01”, Universal Publishers, Parkland, Florida.

Iida, Y., Yamaguchi, T., Nakayama, S., Nakajima, T. and Sakamoto, Y. (2001): “The Solubility of Metallic Selenium under Anoxic Conditions”, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol. 663. pp.1143-1149.

核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会 (2000): “平成12年度研究開発課題評価 (中間評価) 報告書, 評価課題「高レベル放射性廃棄物地層処分研究の全体計画案」平成12年11月”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1440 2000-009.

Kim, J. I. and Kanellakopulos, B. (1989): “Solubility Products of Plutonium(IV) Oxide and Hydroxide”, *Radiochimica Acta*, Vol.48, pp.145-150.

Kitamura, A. and Kohara, Y. (2001): “Solubility of Np(IV) under Carbonate Conditions”, *Japan Nuclear Cycle Development Institute*, JNC TN8400 2001-006.

北村暁, 戸村努 (2003): “還元条件・炭酸共存下におけるスメクタイトに対するネプツニウムの収着挙動”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-025.

Kitamura, A. and Kohara, Y. (2004): “Carbonate complexation of neptunium(IV) in highly basic solutions”, *Radiochimica Acta*, Vol.92, pp.583-588.

Kitamura, A., Shibata, M. and Kitao, H. (2004): “Solubility Measurement of Iron-Selenium Compound under Reducing Conditions”, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol.807, pp.609-614.

北村暁, 戸村努, 中山雅, 佐藤治夫 (2004): “堆積岩に対するセシウムの分配係数に及ぼす競合イオンの影響”, 日本原子力学会「2004年春の年会」要旨集, H11, p.817.

Knopp, R., Neck, V. and Kim, J. I. (1999): "Solubility, Hydrolysis and Colloid Formation of Plutonium(IV)", *Radiochimica Acta*, Vol.86, pp.101-108.

Lemire, R. J., Fuger, J., Nitsche, H., Potter, P., Rand, M. H., Rydberg, J., Spahiu, K., Sullivan, J. C., Ullman, W. J., Vitorge, P. and Wanner, H. (2001): "Chemical Thermodynamics of Neptunium and Plutonium", Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, North-Holland, Amsterdam.

Mills, K. (1974): *Thermodynamic data for inorganic sulphides, selenides and tellurides*, Butterworth & Co Ltd., London.

Moon, H. (1989): "Equilibrium Ultrafiltration of Hydrolyzed Thorium(IV) Solution", *Bulletin of the Korean Chemical Society*, Vol.10, No.3, pp.270-272.

Moriyama, H., Kitamura, A., Fujiwara, K. and Yamana, H. (1999): "Analysis of mononuclear hydrolysis constants of actinide ions by hard sphere model", *Radiochimica Acta*, Vol.87, pp.97-104.

中澤俊之, 岡田賢一, 室井正行, 柴田雅博, 陶山忠宏, 笹本広 (2004): "海水系地下水における砂岩および凝灰岩に対する Sn・Pb・Th の分配係数", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-039.

Neck, V. and Kim, J. I. (2001): "Solubility and Hydrolysis of Tetravalent Actinides", *Radiochimica Acta*, Vol.89, pp.1-16.

Neck, V., Kim, J. I., Seidel, B. S., Marquardt, C. M., Dardenne, K., Jensen, M. P. and Hauser, W. (2001): "A spectroscopic study of the hydrolysis, colloid formation and solubility of Np(IV)", *Radiochimica Acta*, Vol.89, pp.439-446.

Olin, Å., Nolång, B., Öhman, L.-O., Osadchii, E. G. and Rosén, E. (2005): "Chemical Thermodynamics of Selenium", Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, North-Holland, Amsterdam.

Östhols, E., Bruno, J. and Grenthe, I. (1994): "On the Influence of Carbonate on Mineral Dissolution. III. the Solubility of Microcrystalline ThO₂ in CO₂-H₂O media", *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Vol.58, pp.613-623.

Parkhurst, D. L., Thorstensen, D. C. and Plummer, L. H. (1980): "PHREEQE - A Computer Program for Geochemical Calculations", U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations 80-96.

Parkhurst, D. L. (1995): "User's Guide to PHREEQC-A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advective-Transport, and Inverse Geochemical Calculations", U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report 95-4227.

Pitzer, K. S. (1991): *Activity Coefficients in Electrolyte Solutions*, 2nd Edition, CRC Press, London.

Rai, D. (1984): "Solubility Product of Pu(IV) Hydrated Oxide and Equilibrium Constants of Pu(IV)/Pu(V), Pu(IV)/Pu(VI) and Pu(V)/Pu(VI) Couples", *Radiochimica Acta*, Vol.35, pp.97-106.

Rai, D., Swanson, J. L. and Ryan, J. L. (1987): "Solubility of NpO₂·xH₂O(am) in the Presence of Cu(I)/Cu(II) Redox Buffer", *Radiochimica Acta*, Vol.42, pp.35-41.

Rai, D., Felmy, A. R. and Ryan, J. L. (1990): "Uranium(IV) Hydrolysis Constants and Solubility Product of UO₂·xH₂O(am)", *Inorganic Chemistry*, Vol.29, pp.260-264.

Rai, D., Felmy, A. R., Sterner, S. M., Moore, D. A., Mason, M. J. and Novak, C. F. (1997): "The solubility of Th(IV) and U(IV) hydrated oxides in concentrated NaCl and MgCl₂ solutions", *Radiochimica Acta*, Vol.79, pp.239-247.

Rai, D., Felmy, A. R., Hess, N. J., Moore, D. A. and Yui, M. (1998): "A Thermodynamic Model for the Solubility of $\text{UO}_2(\text{am})$ in the Aqueous $\text{K}^+\text{-HCO}_3^-\text{-CO}_3^{2-}\text{-OH}^-\text{-H}_2\text{O}$ System", *Radiochimica Acta*, Vol.82, pp.17-25.

Rai, D., Hess, N. J., Felmy, A. R., Moore, D. A. and Yui, M. (1999a): "A Thermodynamic Model for the Solubility of $\text{NpO}_2(\text{am})$ in the Aqueous $\text{K}^+\text{-HCO}_3^-\text{-CO}_3^{2-}\text{-OH}^-\text{-H}_2\text{O}$ System", *Radiochimica Acta*, Vol.84, pp.159-169.

Rai, D., Hess, N. J., Felmy, A. R., Moore, D. A., Yui, M. and Vitorge, P. (1999b): "A Thermodynamic Model for the Solubility of $\text{PuO}_2(\text{am})$ in the Aqueous $\text{K}^+\text{-HCO}_3^-\text{-CO}_3^{2-}\text{-OH}^-\text{-H}_2\text{O}$ System", *Radiochimica Acta*, Vol.86, pp.89-99.

Rai, D., Rao, L., Weger, T., Felmy, A. R., Choppin, G. R. and Yui, M. (1999c): "Thermodynamic Data for Predicting Concentrations of Th(IV), U(IV), Np(IV), and Pu(IV) in Geologic Environment", Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-009.

Rard, J. A., Rand, M. H., Anderegg, G. and Wanner, H. (1999): "Chemical Thermodynamics Series Volume 3: Chemical Thermodynamics of Technetium", Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Amsterdam, North - Holland.

Ryan, J. L. and Rai, D. (1983): "The solubility of uranium(IV) hydrous oxide in sodium hydroxide solutions under reducing conditions", *Polyhedron* 2, pp.947-952.

Ryan, J. L. and Rai, D. (1987): "Thorium(IV) Hydrous Oxide Solubility", *Inorganic Chemistry*, Vol.26, pp.4140-4142.

齋藤好彦, Ochs, M., 神徳敬, 陶山忠宏, 柴田雅博, 笹本広, 油井三和 (2005): "JNC 収着データベースを用いた収着分配係数の信頼度評価手法の開発", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8410 2005-011.

Sato, H. (1999): "Diffusivity Database (DDB) for Major Rocks: Database for the Second Progress Report", Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-065.

社団法人日本原子力学会 (2005): "収着分配係数の測定方法—深地層処分のバリア材を対象とした測定方法の基本手順: 2005", 社団法人 日本原子力学会 (準備中).

澁谷朝紀, 黒羽光彦, 乾真一, 岡崎充宏, 油井三和 (1998): "還元条件下でのベントナイトに対する Pu(IV) の収着挙動", 日本原子力学会「1998 春の年会」要旨集, p.608.

澁谷朝紀, 陶山忠宏, 柴田雅博 (1999): "核種のベントナイトおよび岩石に対する収着データベース", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8410 99-050.

Silva, R. J., Bidoglio, G., Rand, M. H., Robouch, P. B., Wanner, H. and Puigdomenech, I. (1995): "Chemical Thermodynamics Series Volume 2: Chemical Thermodynamics of Americium", Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Amsterdam, North - Holland.

総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 (2003): "廃棄物安全小委員会報告書—高レベル放射性廃棄物処分の安全規制に関わる基盤確保に向けて", 平成 15 年 7 月 8 日.

陶山忠宏, 笹本広 (2004): "JNC収着データベース (JNC-SDB) の更新: 1998年~2003年までに公開された文献データの追加", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8410 2003-018.

立川博一, 北尾秀夫, 桂井清道, 柳沢一郎, 柴田雅博, 陶山忠宏, 油井三和 (1999): "地層処分模擬環境下でのセレンの溶解度に関する実験的研究", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-068.

Thomas, J. W. (1992): "EQ3/6, A Software Package for Geochemical Modeling of Aqueous

Systems”, Lawrence Livermore National Laboratory.

Ticknor, K. V. (1993): “Actinide Sorption by Fracture-Infilling Minerals”, *Radiochimica Acta*, Vol.60, pp.33-42.

Wolery, T. J. (1992): “EQ3/6, A Software Package for Geochemical Modeling of Aqueous Systems : Package Overview and Installation Guide (version 7.0)”, Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-MA-110662PT1.

Xia, X., Shibata, M., Kitamura, A. and Kamei, G. (2004): “A systematic study on cesium sorption on a sedimentary rock towards reliable safety assessment methodology for HLW disposal”, *Advances in Nuclear and Radiochemistry: Extended Abstracts of Papers presented at the Sixth International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC-6)*, 29 August to 3 September 2004, Aachen, Germany, in cooperation with University of Cologne, GDCh, FECS, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency and International Atomic Energy Agency, edited by Syed M. Qaim and Heinz H. Coenen, pp.779-781.

Xia, X., Kamei, G., Iijima, K. and Shibata, M. (2005): “Selenium Sorption in a Sedimentary rock/saline Groundwater System and Spectroscopic Evidence”, *Material Research Society Symposium Proceedings* (submitted).

Yajima, T., Kawamura, Y. and Ueta, S. (1995): “Uranium(IV) solubility and hydrolysis constants under reduced conditions”, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol.353, pp.1137-1142.

Yamaguchi, T., Sakamoto, Y. and Ohnuki, T. (1994): “Effect of the Complexation on Solubility of Pu(IV) in Aqueous Carbonate System”, *Radiochimica Acta* 66/67, pp.9-14.

吉田泰, 油井三和 (2003a): “熱力学データベースフォーマット変換プログラムの作成”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2002-024.

吉田泰, 油井三和 (2003b): “地球化学計算コードで利用可能なJNC熱力学データベース”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-005.

吉田泰, 笹本広 (2004): “OECD/NEA で整備された熱力学データベース利用環境の整備 その1-Np および Pu の熱力学データ-”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-027.

吉田泰, 笹本広, 神徳敬 (2004): “高イオン強度条件下における活量係数補正パラメータの整備”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-043.

吉田泰, 柴田雅博 (2004): “OECD/NEAで整備された熱力学データベース利用環境の整備 その2 -Tc, U, Np, Amおよびauxiliaryの熱力学データの更新-”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-025 (2004).

Yui, M., Azuma, J. and Shibata, M. (1999a): “JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System”, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-070.

Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R. (1999b): “Groundwater Evolution Modeling for Second Progress Performance Assessment (PA) Report”, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-030.

3. 安全評価モデルの高度化

本章では、1.4.1 項で示した課題と進め方を踏まえて、安全評価解析の信頼性向上を目的として実施した「安全評価モデルの高度化」に関する検討について、以下の項目ごとにこれまでの成果をまとめる。

- ・岩盤中水理・物質移行モデルの高度化（3.1 節）
- ・地下水・間隙水水質形成モデルの高度化（3.2 節）
- ・現象論的核種移行モデルの開発（3.3 節）
- ・コロイド、天然有機物、微生物の影響評価モデルの開発（3.4 節）
- ・生物圏評価モデルの高度化（3.5 節）

3.1 岩盤中水理・物質移行モデルの高度化

本節では、地下水シナリオに基づく安全評価に必要な地下水流動評価手法の開発整備と、岩盤中における物質移行モデルの高度化およびこれに向けて新たに取得したデータについて述べる。

第 2 次取りまとめでは、幅広い地質環境を対象に、処分場のレイアウトを考慮せずに、簡略かつ保守的に地下水移行経路を設定するとともに、亀裂ネットワークモデルを用いた検討に基づき 1 次元平行平板モデルの重ね合わせモデルを核種移行評価モデルとして提示した。また、実際の地質環境条件を対象とした現実的なモデルおよびデータの整備や、安全評価で扱う現象モデルについて、深部地質環境条件下における妥当性を国内外の地下研究施設や ENTRY を活用して確認することを第 2 次取りまとめ以降の課題として設定した。第 2 次取りまとめ以降の研究開発においては、段階的に進められるサイト選定プロセスの各段階に応じて適切な安全評価モデルおよびデータセットを作成する技術の提示（原子力発電環境整備機構，2004；原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会，2000）を、事業の進展に応じて進める必要がある。また、安全評価で扱う現象モデルの妥当性の確認に加えて、各バリアが本来有する物理・化学現象などが安全機能として重複的に働くことを示すことで安全上の裕度を確保すること（原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会，2004）、評価が過度に保守的にならないようなパラメータ値を検討すること（総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会，2003）など、現象理解に基づいたモデルやパラメータ値の提示が求められている。

以上のような観点から、岩盤中水理・物質移行モデルの高度化に関する研究として、下記の 2 項目の研究課題を設定した。

- ① 地上からの調査研究段階に適用可能な地下水流動評価手法の整備と、瑞浪、幌延の深地層の研究施設計画などにおける実際の地質環境データを用いた水理地質構造モデルの構築および地下水流動解析の例示
- ② 現象理解に基づく水理・物質移行モデルの信頼性向上

3.1.1 項では、上記①の地上からの調査研究段階に適用可能な地下水流動評価手法の整備、実際の地質環境データを用いた水理地質構造モデルの構築や地下水流動解析などについての成果を述べる。

上記②に対する課題のうち、3.1.2 項では亀裂を対象とした地下水流動や物質移行現象の理解に関する研究成果を、3.1.3 項では堆積岩中の地下水流動や物質移行現象の理解に関する研究成果を述べる。

3.1.1 地上からの調査段階における地下水流動評価手法の整備

第2次取りまとめでは、幅広い地質環境を対象に、処分場のレイアウトを考慮せずに、簡略かつ保守的に設定した地下水移行経路に基づく核種移行評価が実施されている。実際の地質環境を対象とした核種移行評価においては、処分場を含む領域を通過する地下水の涵養域から流出域までの比較的大きなスケールを対象とした地下水流動評価に基づく、より現実的な地下水移行経路の設定や、地下水流動特性や物質移行特性などの評価が必要となる。

この場合、地下水流動評価の対象は数キロメートル以上の比較的広範な領域となり、地表地形を含む複雑な形状を有する地質・地質構造を適切に数値モデルとして構築する技術が必要となる。

また、このような比較的広範な領域に対して取得可能なデータの量は限られるため、水理地質構造モデルの構築からそのモデルを用いた地下水流動解析、評価といった一連の過程には様々な不確実性の要因が含まれると考えられる。これらの不確実性の要因は、水理地質構造モデルの信頼性や、そのモデルを用いた地下水流動解析結果の信頼性を低下させる。そのため、これらの不確実性の要因が地下水流動解析結果に及ぼす影響を低減するために、限られたデータを最大限活用した検討が必要となる（例えば、Littleboy et al., 1998）。具体的には、地下水流動に影響を及ぼすと考えられる地層の透水係数を間隙水圧データなどから解析的に推定することや、地下水水質データを活用した水理地質構造モデルの確認・更新などである。また、水理地質構造モデルの構築に際して、堆積プロセスなどの地質・地質構造の成因に関わるデータを補完的に活用することで、より詳細なモデルの構築に資することができると考えられる。

さらに、水理地質構造モデルに含まれる種々の不確実性の要因は地下水流動解析結果に影響を与えるため、これらの地下水流動解析結果の不確実性を定量的に評価するための手法を整備する必要がある。

3.1.1.1項では、比較的大きなスケールを対象とした地下水流動評価手法として亀裂ネットワークモデルによる数値モデル化技術の整備と、瑞浪の深地層の研究施設計画などで取得された実際の地質環境データ（たとえば、花室ほか、2002；天野ほか、2003）を用いた地下水流動解析への適用例について述べる。3.1.1.2～3.1.1.4項では、水理地質構造モデルに含まれる不確実性の要因を補完的に検討するための技術とその適用例について述べる。3.1.1.2項では、堆積岩地域での地下水流動を把握する上で必要な水理地質構造モデルの構築に関する検討の一環として、幌延の深地層の研究施設計画などで取得された実際の地質環境データ（たとえば、山本ほか、2002a）のうち、間隙水圧データを用いた地下深部の地層の透水係数分布の推定を試みた。3.1.1.3項では、地下水水質データを活用した水理地質構造モデルの検討として、スウェーデンのエスポ地下研究施設の建設に伴う地下水組成変化の観測データを用いた水理地質構造モデルの検証に関する検討を行った。3.1.1.4項では、堆積岩地域を対象に堆積プロセスを考慮した地質構造の推定技術の開発を行った。3.1.1.5項では、水理地質構造モデルの不確実性の要因が地下水流動解析結果に及ぼす影響を定量的に評価する方法について述べる。

3.1.1.1 亀裂ネットワークモデルの高度化

(1) はじめに

亀裂ネットワークモデルは、花崗岩などの亀裂性岩盤を対象とした地下水流動および物質移行の評価において、岩盤中の個々の亀裂や断層といった水理地質構造を数値的に表現したモデルであり、第2次取りまとめにおいてはレファレンスケースモデルの構築のための基礎的な検討に用いられた。第2次取りまとめに向けた研究開発段階では、人工バリア近傍における核種の移行遅延に重点を置いたニアフィールドアプローチの観点から、数十メートルから数百メートルスケールを対象としたモデル化手法・解析手法の開発と適用事例の検討が行われてきた。第2次取りまとめ以降は、実際の地質環境を対象とした段階的な調査の進展に応じて、適切に水理地質構造を数値的にモデル化する技術の開発が必要となる。

実際の地質環境を対象とした場合、地下水流動の評価対象スケールは、対象とする深度領域を通過する地下水の涵養域から流出域を含む、数キロメートル以上に及ぶ比較的広範な領域となる（分冊1 4.2.2 項参照）。対象領域の地下水流動の特徴を適切に評価するために、水理地質構造モデルの境界を、地表面形状、河川、分水嶺などを考慮した複雑な形状により設定する必要がある。また、結晶質岩などの基盤岩への地下水の流入量を求める上で、基盤岩を不整合に覆う堆積岩中の地下水流動が重要となる場合がある。したがって、実際の地質環境を対象とした亀裂ネットワークモデルを用いた水理地質構造モデル化の基本機能として、以下の2項目について整備した。

① 曲面構造のモデル化機能

モデル境界面（地表面形状や河川、分水嶺など）、不整合面、断層などを曲面でモデル化する機能

② 被覆堆積岩モデル化機能

基盤岩を不整合に覆う堆積岩を多孔質媒体でモデル化し、亀裂ネットワークモデルとともにモデル化する機能

さらに、亀裂ネットワークモデルは透水性に寄与する個々の亀裂をモデル化するため、モデル化の対象領域が数キロメートルに及ぶ比較的広範な場合には、数値解析に必要な計算機容量および計算時間が膨大となり、現実的に数値解析を実施できない場合が生ずる。そのため、数値解析に必要な計算機容量を低減して効率的に解析を実施するために、以下の機能を開発した。

③ 等価不均質連続体モデルへの近似機能

亀裂ネットワークモデルの個々の亀裂の効果を考慮して等価不均質連続体モデルへと近似する機能

④ 入れ子式モデル化の機能

連続体モデルと亀裂ネットワークモデルを入れ子式にモデル化する機能

以下では、上記4つの機能と、それらを用いて実施した地下水流動解析例について概要を述べる。

(2) 研究内容

図3.1.1-1に、地表面、被覆堆積岩と基盤岩の不整合面および断層面のモデル化の例を示す。地表面と不整合面はモデル化領域境界となり、断層面は亀裂モデルとして三角形要素により曲面が表現されている（曲面構造のモデル化機能を付加）。図3.1.1-1のように堆積岩が基盤岩を覆っている場合には、堆積岩を多孔質連続体などで適切にモデル化する必要がある。図3.1.1-2は、堆積岩を多孔質連続体要素でモデル化した例である。この場合、地表地形や基盤岩との不整合面などの複雑な形状を考慮した要素分割が必要となる。以上のように、曲面構

造のモデル化機能と被覆堆積岩のモデル化機能を亀裂ネットワークモデルに追加した。

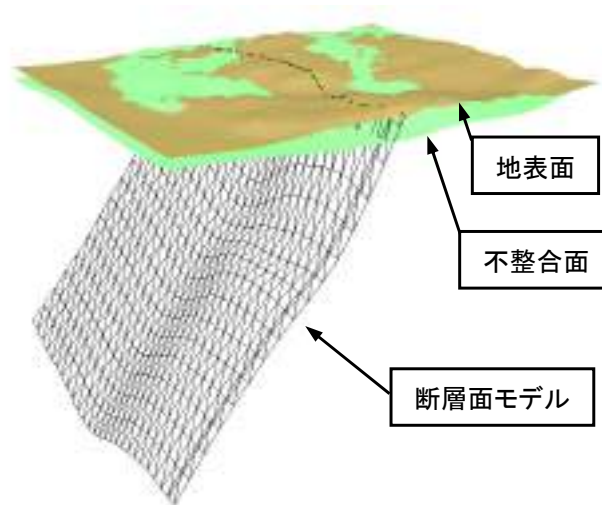


図 3.1.1-1 地表面，被覆堆積岩と基盤岩の不整合面および断層面の曲面構造のモデル化例

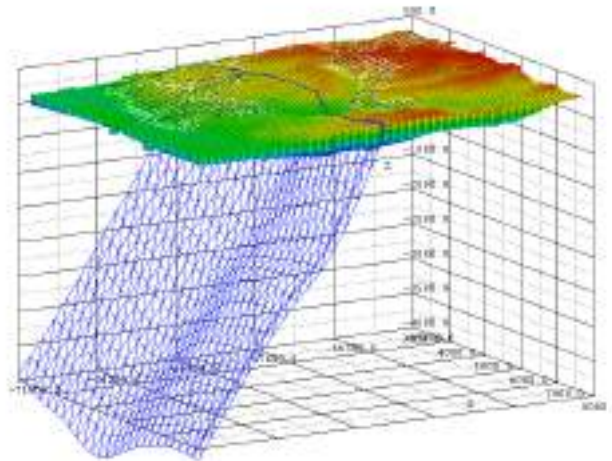


図 3.1.1-2 被覆堆積岩の連続体要素と断層モデル

亀裂ネットワークモデルは透水性に寄与する個々の亀裂をモデル化するため、数値計算に必要な計算機容量および計算時間の観点から、数値モデルとして取り扱うことができる亀裂の数が制限される。そのため、亀裂ネットワークモデルを用いた数値計算が可能な領域のスケールや亀裂の数は限定される。このような課題に対しては、亀裂のネットワーク構造を等価な多孔質媒体に近似し、連続体モデルでの浸透流問題に変換するなどの試みが行われてきた（下茂・山本，1996）。しかし、連続体モデルへの近似を行った場合は、連続体要素スケールで亀裂の効果が平均化されるため、解析結果を調査現場へフィードバックすることが困難である場合が多い。また、様々な制約条件から調査対象となる領域が空間的に限定されるが、地下水流動評価の観点からはより広範な領域を対象とした検討が必要な場合もある。このような観点から、詳細な調査が可能な領域においては亀裂ネットワークモデルを用いつつ、また、調査データの種類の少ない、もしくは量が相対的に疎な領域においては、等価な不均質連続体モデルへの近似を行うことにより、計算容量を低減させた入れ子式モデル化機能を開発した。その概念図を図 3.1.1-3 に示す。

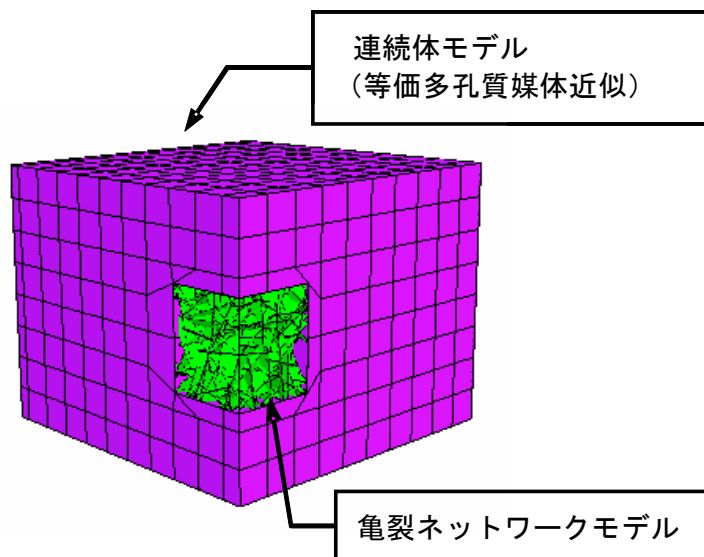


図 3.1.1-3 連続体モデルと亀裂ネットワークモデルを入れ子式にモデル化した概念図

亀裂ネットワークモデルの等価不均質連続体モデルへの近似には、クラックテンソル理論 (Oda, 1985) を応用した。クラックテンソル理論は、亀裂の幾何形状の分布データから透水テンソルを求めるもので、亀裂間の連結性の影響を考慮できないなどの制約条件があるが、これまでに様々な検討例が報告されている (たとえば, Oda et al., 1987 ; 中屋ほか, 1995)。本研究では、亀裂のネットワーク構造による空間的に不均質な透水性分布、および亀裂の卓越方向に起因した透水異方性を考慮するために、下茂・山本 (1996) が用いた手法と同様に、亀裂ネットワークモデルと任意の連続体要素を重ね合わせ、個々の連続体要素に含まれる亀裂の幾何情報から透水テンソルを求める手法を用いた。これにより、亀裂ネットワークモデルを用いた解析に、従来の不均質連続体の浸透流解析手法を適用することが可能となる。また、亀裂ネットワークモデルと連続体要素の接合部において、隣接する節点を共有し、両者が同じポテンシャルを持つものと仮定した (図 3.1.1-4 参照)。このことにより、亀裂ネットワークモデルと 3 次元連続体要素を重ね合わせたひとつの有限要素マトリクスを構成することができる。

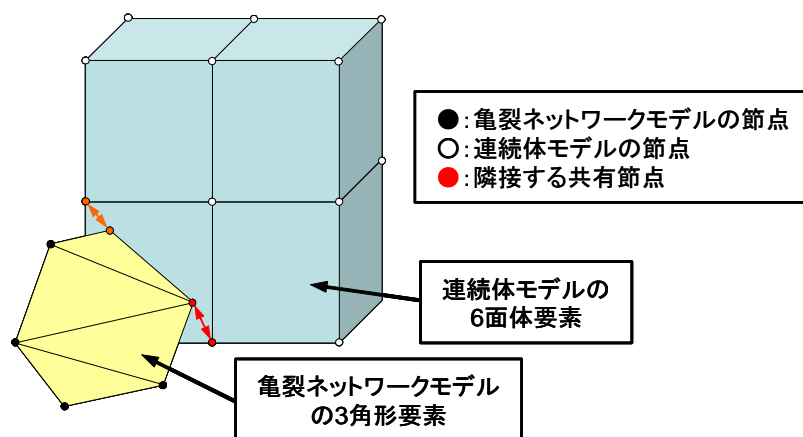


図 3.1.1-4 亀裂ネットワークモデルと連続体モデルの接合部概念図

本手法により地下水流動解析に必要な計算容量が低減し、数キロメートルスケールの比較的広範な領域を対象とした地下水流動解析を効率的に実施することが可能となる。加えて、対象領域を亀裂ネットワークモデルでモデル化することにより、詳細な調査により求められる亀裂の地質学的、水理学的特性などのデータをモデルへ直接反映させることが可能となる。

以上の機能を用いた事例として、瑞浪の深地層の研究施設計画などで取得されたデータ（たとえば、花室ほか，2002；天野ほか，2003）を用いて構築したモデル化の例を図 3.1.1-5 に示す。本モデルは瑞浪の研究所用地を含む約 9 キロメートルスケールの領域を対象に確率論的に発生させた亀裂ネットワークモデルに基づき、瑞浪の研究所用地付近を亀裂ネットワークモデルにより、その周辺を等価不均質連続体モデルによりそれぞれモデル化した。また、基盤岩を不整合に覆う堆積岩を多孔質媒体でモデル化した。

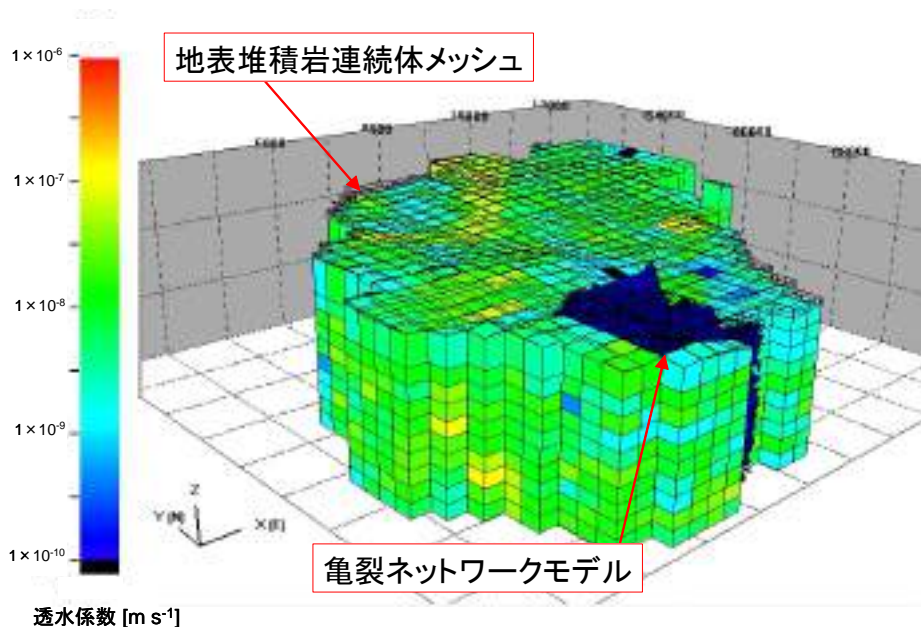


図 3.1.1-5 連続体モデルと亀裂ネットワークモデルを入れ子式にモデル化した例
 亀裂ネットワークモデル：青で示された領域
 等価不均質連続体モデル：周辺領域，色は透水係数を示す
 被覆堆積岩連続体モデル：連続体要素の格子を黒線で示す

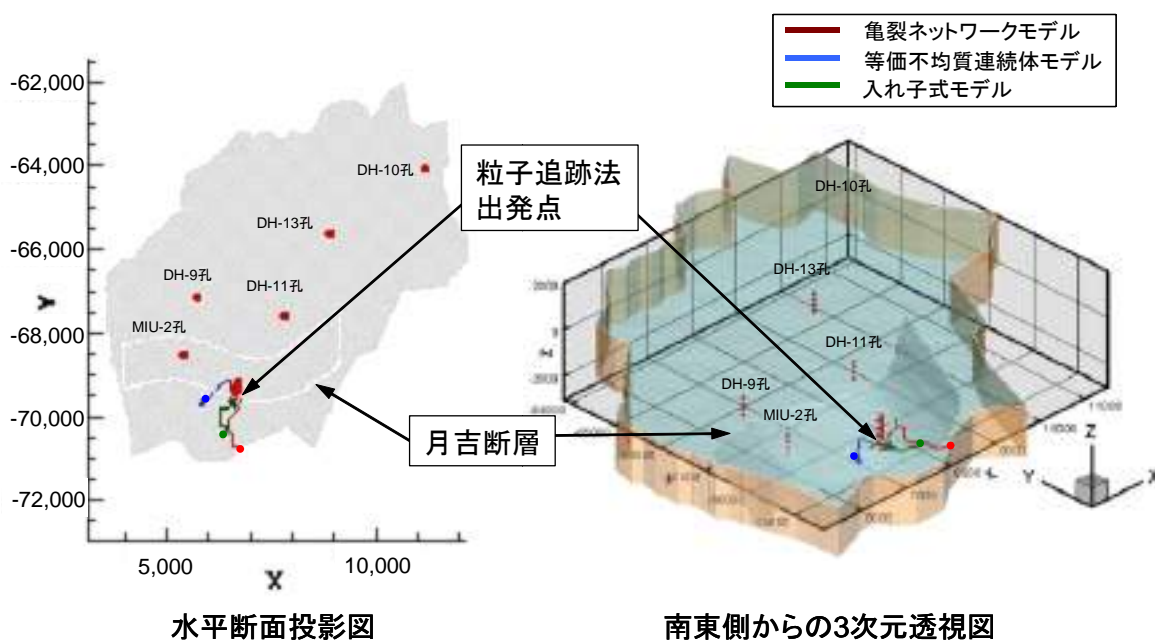


図 3.1.1-6 瑞浪の深地層の研究施設計画などで取得されたデータを用いた地下水流動解析例
 赤，青，緑の線はそれぞれ粒子追跡法によって求められた移行経路を示す

地下水流動解析の一例として、粒子追跡法による地下水の移行経路図を図 3.1.1-6 に示す。同図は確率論的に発生させた亀裂ネットワークモデルの 1 リアライゼーションを用いた解析結果である。粒子追跡法の出発点は瑞浪の研究所用地内に設定した。この図より入れ子式モデルを用いた結果は亀裂ネットワークモデルとほぼ同様に、出発点からほぼ南方向へ移行していることが分かる。これは、粒子追跡法から求められた移行経路が入れ子式モデルにおいては入れ子部である亀裂ネットワークモデル内に留まっていること、入れ子の亀裂ネットワークモデル部に境界条件を与えている等価不均質連続体モデル部から求められる平均的な地下水流動が亀裂ネットワークモデルとほぼ同様の結果であったためと考えられる。また、その一方で全領域を等価不均質連続体モデルで近似した場合は、亀裂ネットワークモデルとは異なる方向へ移行する結果となった。これは、連続体モデルに近似することにより平均的な地下水流動は表現できるものの、局所的な地下水流動に着目すると平均化による誤差の影響が大きくなるためと考えられる。以上のことから、等価不均質連続体モデルは、領域の平均的な地下水流動の評価は可能と考えられるものの、物質移行評価において重要となる局所的な地下水流動については誤差が大きくなる可能性があり、亀裂ネットワークモデルや必要に応じて入れ子式モデルを用いる必要があると考えられる。

(3) 結論

地上からの調査段階における比較的広範な領域での地下水流動および物質移行評価を目的とした亀裂ネットワークモデルによるモデル化手法の整備として、基本的なツールを整備した。それらのツールのうち、特に入れ子式モデルを用いた解析手法は、詳細調査の対象となる領域においては、亀裂の地質学的、水理学的調査データなどから直接的に亀裂ネットワークモデルを用いてモデル化し、その周辺領域は亀裂ネットワークモデルの多孔質媒体近似により、数値モデルの簡素化を図るものである。瑞浪の深地層の研究施設計画で行う詳細な調査領域を対象とした地下水流動評価においては、その領域の地下水流動に影響を及ぼすと考えられるより広範な領域を包含したモデル化・解析が必要である。その場合、着目しているスケールに応じて、モデルの解像度を変えて入れ子式モデル化手法を採用し、数値解析に必要な計算容量を小さくすることにより、①調査データとの対比をしながらのトライアンドエラー的なモデル構築・解析、②概念モデルやデータの不確実性を考慮した多数のモデル構築・解析、などのモデル構築・解析作業を効率的に実施できるものと期待される。

(4) 今後の課題

瑞浪の深地層の研究施設計画などでは、評価の対象となるスケールに応じて地下水流動に影響を与える地質・地質構造を同定、調査、評価するとともに、それらの情報から決定論的に水理地質構造モデルを構築し、各調査段階における地下水流動の評価を実施している（分冊 1 4.2 節参照）。本項で紹介した新機能を付加した亀裂ネットワークモデルによる水理地質構造モデルの構築および地下水流動解析は、瑞浪の深地層の研究施設計画で実施されてきた決定論的なモデルを補完するものとして活用することができる。さらに、亀裂ネットワークモデルを用いた地下水流動解析は、物質移行評価に必要な卓越した核種の移行経路などを考慮した局所的な地下水流動特性の評価という観点からも重要となる。今後は、瑞浪の深地層の研究施設計画の調査と評価の進捗に合わせて、補完モデルのひとつとして個々の亀裂の効果を直接的に考慮したモデル化・解析を実施するとともに、個々の亀裂中の地下水流速の分布や地下水流動に寄与する平均的な間隙率の評価などの物質移行評価に必要な地下水流動特性の評価についての検討を実施する。

3.1.1.2 実測された間隙水圧データによる水理地質構造の推定

(1) はじめに

第2次取りまとめでは、サイトや岩種を特定せず、わが国の幅広い地質環境を対象としたデータの整備、評価を行った。第2次取りまとめ以降の研究開発では、段階的に進められるサイト選定プロセスの各段階に応じて適切な評価モデルを作成する技術の提示など、処分事業の進展に応じた研究開発を進める必要がある。そこで、幌延の深地層の研究施設計画の地上からの調査研究段階において取得されている実際の地質環境データなどを対象に、堆積岩地域の地下水流動評価に必要な水理地質構造モデルの構築に関する検討の一環として、間隙水圧データを用いた地下深部の透水係数分布の推定を試みた（井上ほか，2004；伊藤ほか，2004）。同様の検討は、数十キロメートル規模の広範囲の領域を対象としたものは多くはないが、米国ユッカマウンテン・サイトでの事例などがある（たとえば，Zyvoloski et al., 2003）。

(2) 研究内容

対象領域の水理地質構造のモデル化にあたっては、3次元水理地質構造モデル（今井ほか，2002）に、平成14年度までに取得したボーリング調査データ（核燃料サイクル開発機構，2003）を反映させ、地層境界のずれなどの補正を行った（図3.1.1-7）。

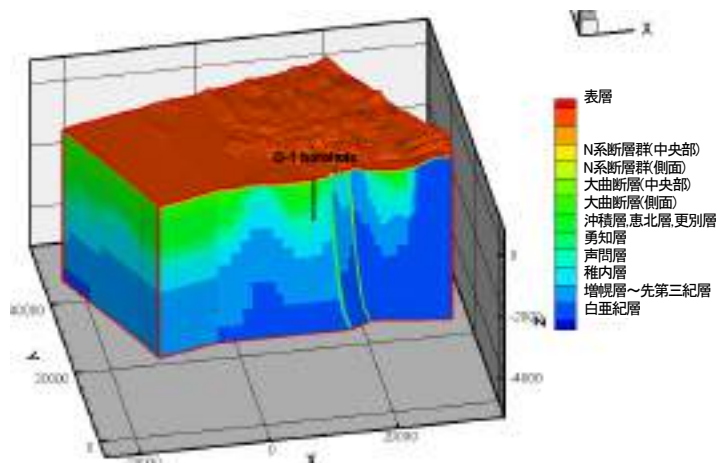


図 3.1.1-7 解析対象とした幌延地域の地質構造モデル（井上ほか，2004）

対象領域は、D-1 孔（動力炉・核燃料開発事業団，1987），および幌延の深地層の研究施設計画でボーリング調査を行った HDB-1 孔（山本ほか，2002a），HDB-2 孔（山本ほか，2002b）を含む，東西 40 km，南北 30 km，標高-5,000 m の範囲とした。

稚内層中で高い間隙水圧が観測されたことから、稚内層中の地下水が被圧されている可能性を考慮し、稚内層およびそれより上位の層準である声問層の上部の透水係数をそれぞれ未知パラメータと仮定した。未知パラメータとした部分以外の透水係数の値は、これまでの調査試験に基づく値（今井ほか，2002）を用いた。断層の透水性については、これまでの調査試験において明確になっていないことから、予察的に、亀裂が発達した高透水性部に粘土化した低透水性部がはさまれたサンドイッチ構造，および低透水性部のみからなるものの 2 種類のケースを設定した（表 3.1.1-1）。

以上の設定の下で、地下水流動解析で求められる各ボーリング孔の間隙水圧と実測値との差が最小になるように各未知パラメータを推定する手法（Finsterle et al., 1997；Finsterle et al., 1998）により、未知パラメータである透水係数を求めた。境界条件は、対象領域の側・底面は不透水，陸部を地表面，海部を標高 0 m の固定水頭とした。推定の結果得られた声問層の上部および稚内層の透水係数は、これまでの報告（今井ほか，2002）の値に比べ、それぞれ 1/10，1/100 程度の値となり、高い間隙水圧が観測された稚内層，あるいはその上位の

声問層の上部に低透水性層の存在する可能性が示唆された（表 3.1.1-2）。

表 3.1.1-1 設定した透水係数

		ケースA	ケースB	ケースC	ケースD
地質構造	地層	透水係数 [m s ⁻¹]			
	表層	2.0 × 10 ⁻⁶			
	沖積層, 恵北層, 更別層	1.0 × 10 ⁻⁶			
	勇知層	1.0 × 10 ⁻⁷			
	声問層 上部	未知パラメータ			
	稚内層	1.0 × 10 ⁻¹⁰	未知パラメータ	1.0 × 10 ⁻¹⁰	未知パラメータ
	増幌層～先第三紀層	5.0 × 10 ⁻¹⁰			
	白亜紀層	1.0 × 10 ⁻¹¹			
	断層	サンドイッチ構造		低透水性部のみ	
	大曲断層, N系断層群 側部 中央部	1.0 × 10 ⁻⁸		1.0 × 10 ⁻¹⁰	

表 3.1.1-2 透水係数推定結果

		[単位: m s ⁻¹]				これまでの報告の値 (今井ほか, 2002)
地層	断層の設定	ケースA	ケースB	ケースC	ケースD	
				サンドイッチ構造		低透水性部のみ
声問層の上部		7.92 × 10 ⁻¹¹	9.97 × 10 ⁻¹¹	1.26 × 10 ⁻¹¹	6.29 × 10 ⁻¹¹	1.0 × 10 ⁻⁹
稚内層		—	9.97 × 10 ⁻¹³	—	9.97 × 10 ⁻¹¹	1.0 × 10 ⁻¹⁰

一方、全水頭分布（図 3.1.1-8）は、D-1 孔では解析結果の分布傾向が実測値と比較的良好一致したが、HDB-1 孔および HDB-2 孔では実測値との差が大きい結果となった。この原因として、HDB-1 孔および HDB-2 孔では声問層が地表に露出しているため、低透水性層として機能していない可能性が考えられる。また、断層の透水性については、サンドイッチ構造を仮定したモデルの方が、深度の増加に伴い全水頭が高くなる傾向にある。既往の報告（兼清, 1999）では、より深部（増幌層以深）で高い間隙水圧が観測された例が示されており、今回の検討では、サンドイッチ構造を仮定したモデルの方が実測値の傾向と一致する結果となった。

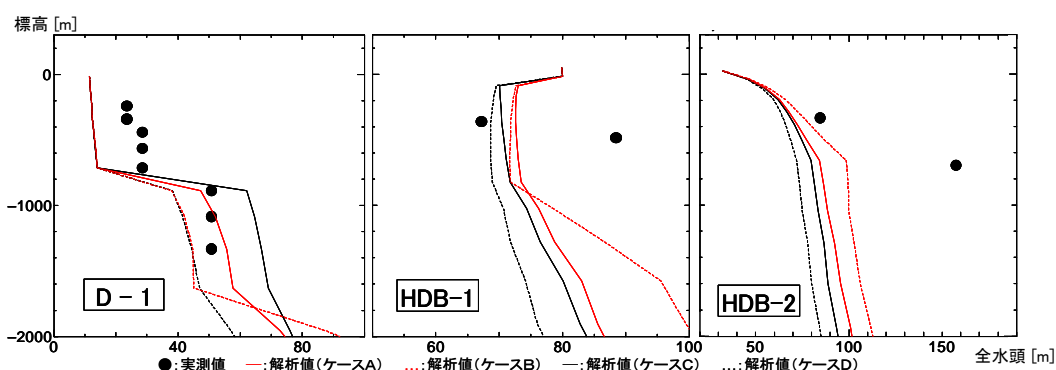


図 3.1.1-8 各ボーリング孔での全水頭分布

(3) 結論

地上からの調査研究段階における実際の地質環境データを用いて、未知パラメータを推定する手法により、比較的広範囲な領域の透水係数分布を推定した。これにより、既往の調査結果に比べ、透水性の低い部分の存在を示唆する結果が得られた。本手法により、限られた調査試験データから水理地質構造モデルの特徴的な傾向を推定できる可能性を示した。本手法により、対象領域の地下水流動に影響を及ぼす可能性がある要因を抽出し、調査や解析にフィードバックするなどの利用が可能と考えられる。

(4) 今後の課題

高い間隙水圧の要因として、地層などの透水性だけでなく堆積岩の形成過程で生じる続成作用や地層の変形などの影響を考慮した検討も必要であると考えられる。また、当該地域の地下水に含まれる塩分やガスの濃度分布などの間隙水圧以外の情報との対比により、推定手法の妥当性を検討することが有効であると考えられる。

3.1.1.3 地下水水質変化を考慮した水理地質構造モデルの信頼性向上

(1) はじめに

水理地質構造モデルを構築，あるいは検証するうえで，地球化学データの利用の重要性が認識されてきている。安全評価においては，モデルの信頼性の確保が重要な課題であり，異分野のデータが整合的に仮説を支持することを示す **Multiple lines of evidence**（たとえば，OECD/NEA, 2002, 2004）のひとつとして，水理地質構造モデルの妥当性を水理データ以外のデータを用いて検証するための検討が世界的に行われている。このような検討のひとつとして，地下水流動と地下水化学の統合については，近年スウェーデンのエスポ地下研究施設（HRL）において，過去に行われた坑道掘削に伴う地下研究施設周辺の水位低下の予測解析（たとえば，Uchida et al., 1997）に加え，地下水流動と地下水化学を統合したモデル化に関する検討が行われた（内田ほか，2002）。サイクル機構では，実際の地質環境に対するモデル化技術開発の一環として，エスポ地下研究施設の地下水流動・物質移行モデリングタスクフォースを活用して，地下水流動と地下水化学を統合したモデル化に必要な技術開発を行った。

(2) 研究内容

モデル化領域を図 3.1.1-9 に示す（Rhén and Smellie (2003) を編集）。モデル化領域はアクセス坑道の螺旋状部を中心とし，エスポ島全体を含む $2\text{ km} \times 2\text{ km} \times$ 深さ 1 km とした。坑道掘削は 1990 年 10 月に開始され，1994 年 9 月に終了した。坑道内には各所に堰が設置され，堰にはさまれた区間ごとに坑道への地下水湧水量が測定された。エスポ島およびその周辺に掘削された 63 孔のボーリング孔で水頭の経時変化が測定された。地下水水質データに関しては，ボーリングと坑道の 98 箇所です Na , K , Ca , Mg , HCO_3 , Cl , SO_4 , $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^2\text{H}$, ^3H などの経時変化が測定された。

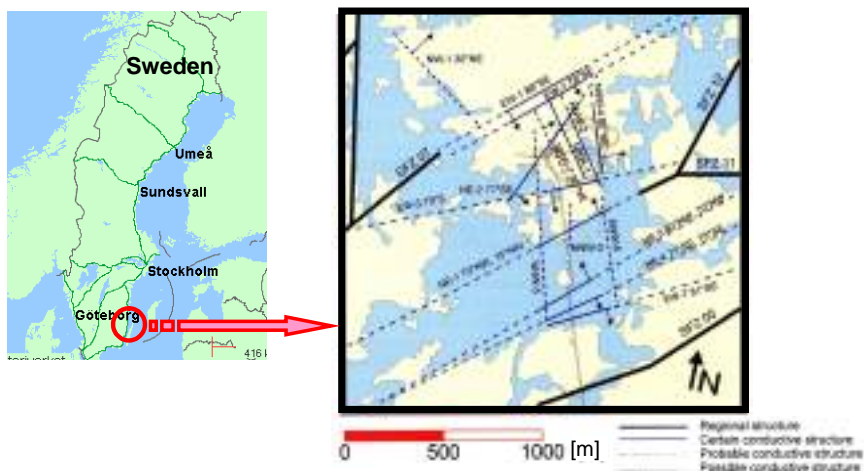


図 3.1.1-9 本研究のモデル化領域と断層の分布概念図（Rhén and Smellie (2003) を編集）

主要な地質構造として，図 3.1.1-9 に示した 22 本の断層について，断層面を平板と仮定した水理地質構造モデルを作成した。また，これらの断層にはさまれた健岩部については，トレース長および透水量係数の実測値から得られた確率密度関数をもとに，統計的に亀裂を発生させた。水理境界については，底面は不透水境界，側方境界は広域地下水流動解析（Svensson, 1999）から得られる水頭を与えた固定水頭境界，上部境界については，陸上部は浸透量を与えた固定流量境界，バルト海については水頭を 0 m とする固定水頭境界とした。坑道内側境界は，各堰間における坑道の全節点の流量収支で定義するグループ節点流量とし，収支を各堰で測定された湧水量とした。このモデルを用いて，坑道掘削に伴うボーリング孔での水頭変化を再現するようモデルのキャリブレーションを行った。

また、本解析においては、起源の異なる地下水を端成分として特定し、坑道への地下水流入に伴いどのように地下水が混合したかを検討した。このために、ケモメトリックス法 (Cave and Harmon, 1997 ; Cave and Wragg, 1997) を、図 3.1.1-10 に示すように、地下水組成の端成分のみならず混合割合についても計算が行えるように改良した。改良したケモメトリックス法を用いて、SKB から提供されたすべての地下水水質データについて主成分分析を行い、その結果 7 種類の端成分が特定された。得られた端成分の組成を表 3.1.1-1 に示す。ここで、端成分 1 は鹹水 (ここでは塩分濃度が 100,000 mg ℓ⁻¹ 以上の塩水)、端成分 2 は海水または塩分濃度の高いリトリナ海水、端成分 3 は氷河水、端成分 4 は K, Mg が増加する岩石-水反応による水、端成分 5, 6 は岩石-水反応または微生物の影響による水、端成分 7 は堆積物中の間隙水と解釈された。

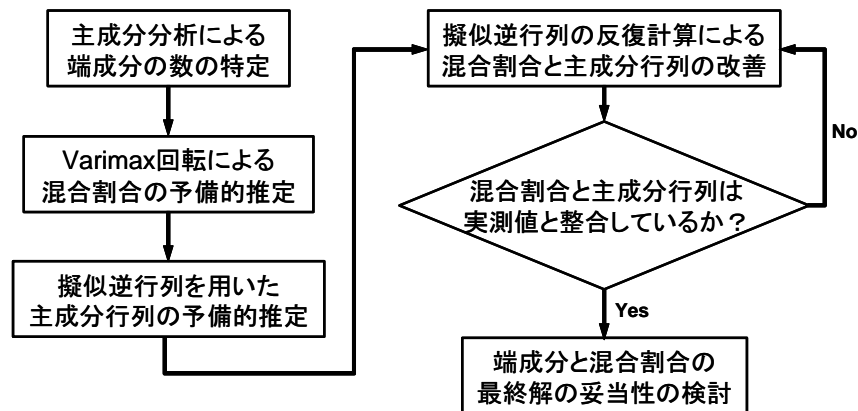


図 3.1.1-10 ケモメトリックス法による解析手順

表 3.1.1-3 端成分の組成

端成分	Na [mg ℓ ⁻¹]	K [mg ℓ ⁻¹]	Ca [mg ℓ ⁻¹]	Mg [mg ℓ ⁻¹]	HCO ₃ ⁻ [mg ℓ ⁻¹]	Cl [mg ℓ ⁻¹]	SO ₄ ²⁻ [mg ℓ ⁻¹]	δ ¹⁸ O [‰]	δD [‰]	³ H [TU]	電荷 バランス [%]
1	8508.6	5.1	17235.0	0.0	47.1	44001.5	800.3	-11.8	-75.7	14.6	-1.1
2	2066.3	0.0	1379.1	169.1	225.4	6163.5	0.0	-8.8	-68.5	0.0	-1.4
3	456.9	5.5	258.4	16.7	0.0	1207.9	79.8	-12.4	-94.2	0.0	-2.1
4	0.0	1256.2	0.0	2020.1	505.6	0.0	0.0	0.0	0.0	492.0	92.0*
5	0.0	0.0	0.0	0.0	22039.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	-100.0*
6	0.0	0.0	0.0	0.0	298.8	0.0	0.0	0.0	0.0	391.5	-100.0*
7	2021.3	17.8	205.4	8.0	0.0	3230.3	1284.4	-14.3	-107.9	0.0	-8.6

*) 電荷バランスが取れていないのは、SKB からすべてのデータが提供されていないことによる。

坑道掘削開始後の混合割合の推定に際しては、複数の粒子の時間ステップごとの位置を観測地点から上流側に追跡し (バックワードトラッキング法)、その位置での地下水の初期の混合割合を粒子に与えることにより、各時間における観測地点での端成分の混合割合をすべての粒子の総和として求めた。また、実測された地下水水質データについてもケモメトリックス法により端成分の混合割合を計算した。水理キャリブレーションを行ったモデルを用いて、端成分の混合割合を計算すると、良好に混合割合を予測できたボーリング孔と誤差の大きいボーリング孔とが認められた。良好に予測されたボーリング孔の一例として、図 3.1.1-11 に KA3005A 孔における端成分の混合割合の計算値と実測値に基づいてケモメトリックス法により計算した端成分の混合割合の比較を示す。誤差の大きいボーリング孔の一例として、図 3.1.1-12 に KAS07 孔の結果を示す。

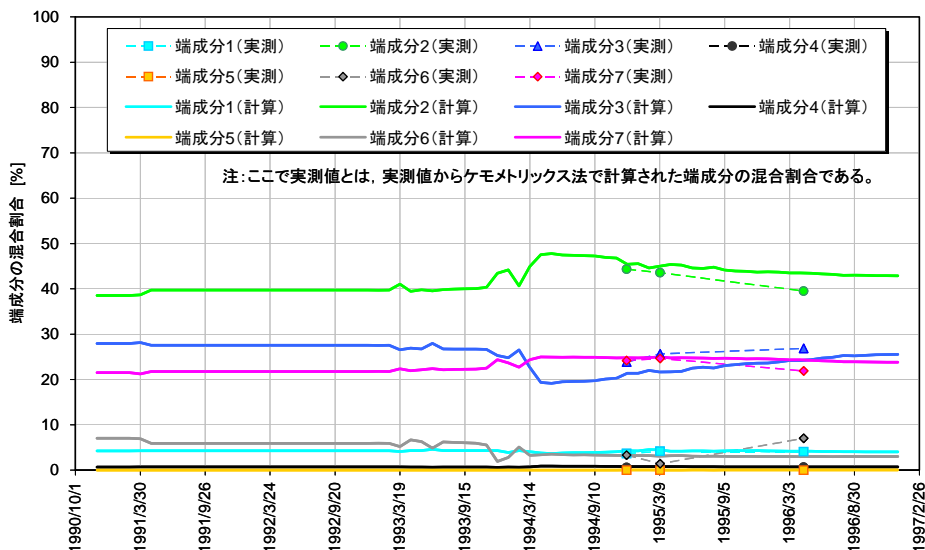


図 3.1.1-11 KA3005A 孔における端成分混合割合の実測値と計算値の比較例

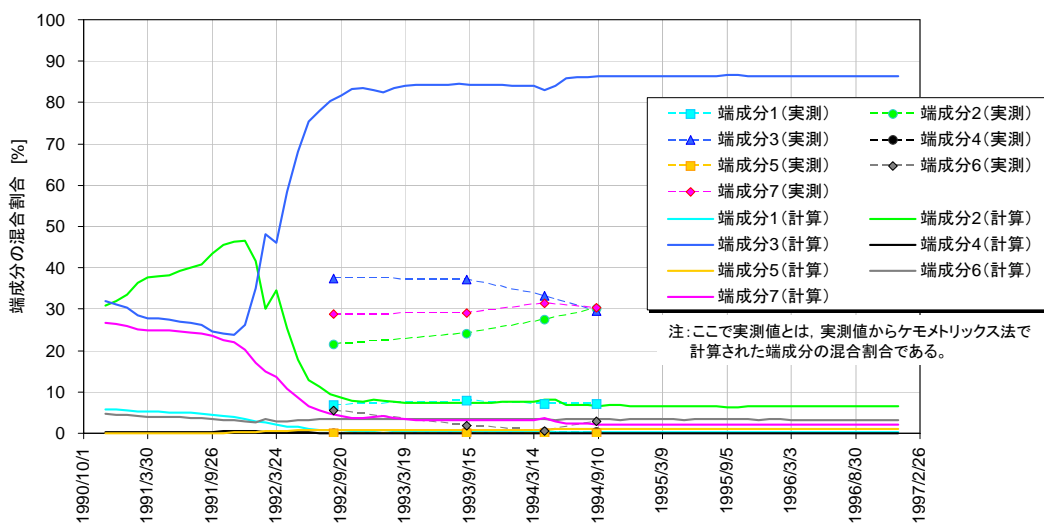


図 3.1.1-12 KAS07 孔における端成分混合割合の実測値と計算値の比較例

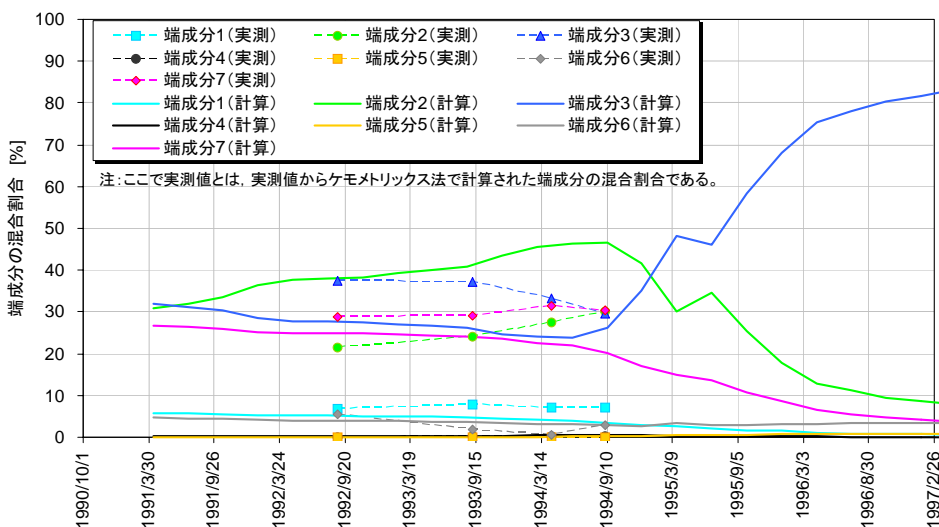


図 3.1.1-13 KAS07 孔における物質移行開口幅 a_T 補正後の端成分混合割合の実測値と計算値の比較例

水頭圧変化は水圧の伝播現象であるのに対して、地下水組成の変化は、物質移行現象である。今回の解析対象はトンネル掘削後の加速された流速場であるため、地下水組成の変化は、拡散現象などの緩慢なプロセスの影響は小さく、主として実流速を反映していると考えられる。図 3.1.1-12 に見られるような実測値と計算値の違いについては、計算における実流速が速いため計算値の変化が早く起きていると推定される。この違いは、亀裂の物質移行開口幅の違いに起因している可能性がある。このため、当初は亀裂の物質移行開口幅 $a_T = \alpha T^{1/2}$ （ここで、 α ：比例定数、 T ：透水量係数 [$m^2 s^{-1}$]) を、過去のトレーサー試験に基づき $\alpha = 2$ と設定していたが、 α の設定値を断層ごとに補正して再計算を行った。KAS07 孔における物質移行開口幅補正後の端成分混合割合の計算結果の一例を図 3.1.1-13 に示す。図のように、計算結果は混合割合が大きく変化する時期について実測値の傾向と整合する結果となった。

(3) 結論

水理地質構造モデルの検証に、地下水水質データの変化を用いる手法を提案した。今回の解析においては、坑道掘削に伴う水頭変化を再現可能な水理地質構造モデルを用いた場合には、端成分の混合割合を概ね良好に再現した。しかしながら、端成分の混合割合の変化は溶質の移動によるものであり、有効間隙率もしくは亀裂の物質移行開口幅の設定が重要となることが分かった。地下水組成の変化は物質移行現象であり、本来、移流・分散に加えて、マトリクス拡散や収着が関わってくるが、坑道掘削後の坑道全体が揚水試験と見なせる比較的速い流速場においては移流が卓越するため、地下水流動に寄与する有効間隙率、すなわち亀裂性媒体では物質移行開口幅、多孔質媒体においては間隙率の推定や検証に、地下水水質データを使用することは有効と考えられる。地下水流動解析に用いられる水理地質構造モデルの妥当性を確認するデータは、ボーリング孔などで観測された水頭値や坑道への湧水量など離散的なデータが主体となる。しかし、本研究で実施したように、坑道掘削に伴って観測された坑道へ湧水した地下水の組成を、端成分の組み合わせで説明することで、坑道掘削に伴う水位変化や湧水量変化などの水理情報だけではなく、地下水中の溶質の移動などの物質移行に関するデータが追加されることになり、構築した水理地質構造モデルの検証もしくは信頼性向上を図るうえで有効と考えられる。

(4) 今後の課題

本手法のわが国の実際の地質環境への適用事例として、瑞浪や幌延の深地層の研究施設計画などで得られたデータを用いた検討を行うとともに、地球化学関連や水理データ取得方法など、わが国の実際の地質環境を対象とした場合の課題の有無について検討する。さらに、水理地質構造モデルの検証に有効なデータとして、地下水水質データに加えて鉱物結晶形や鉱物組成、放射性同位体、温度などの種々のデータが考えられ、瑞浪や幌延の深地層の研究施設計画などの原位置で取得されたそれらデータを用いることが可能な、統合的な水理地質構造モデル構築手法を検討していく必要がある。

3.1.1.4 堆積プロセスを考慮した地質構造推定技術の開発

(1) はじめに

堆積岩からなる地層において、地下水は、地層中を一様に移動したり、地層の有する透水性などの不均質性に依存して、透水性の高い経路を優先的に移動するなど、多様な挙動を示す。堆積岩の不均質性は、堆積岩中において、粒径分布や鉱物組成の異なる地層が不均質に分布することに由来するものである。堆積岩における核種移行評価に際しては、このような堆積岩の不均質性を考慮した水理・物質移行のモデルとパラメータの設定が必要である。

第2次取りまとめでは、幅広い地質環境を対象として、簡略化した保守的なモデルを設定することにより核種移行評価を行った。堆積岩の不均質性が物質移行特性に与える影響については、粒子間空隙に加えて層理や不整合面などの地質構造要素が選択的な移行経路としての役割を果たす可能性が示され、具体的な検討は第2次取りまとめ以降の課題となった。

第2次取りまとめ以降の研究開発では、段階的に進められるサイト選定プロセスの各段階に応じて、堆積岩の不均質性を適切に評価し、堆積岩中における核種移行評価に資する研究開発を進める必要がある。

堆積岩の不均質性は、堆積物が運搬され堆積するまでの一連のプロセス（以下、「堆積プロセス」という）を反映している。このため、不均質性の空間分布は、ボーリング孔で得られたデータについて、堆積プロセスを考慮しながら検討することにより、より確度の高い推定ができるものと考えられる。このような手法は、1980年代以降、計算機能力の向上に伴って石油探査の分野などで進歩し、実際の場合への適用も試みられている（中山，1991）。地上からの調査段階での限られた情報に基づいた広い範囲の岩相分布を推定する場合に、本手法は有効であると考えられる。

そこで本研究では、地上からの調査段階を対象とした地下水流動評価手法の整備の一環として、堆積プロセスを考慮して堆積岩の岩相分布を推定する技術を開発することを目的とした。

(2) 研究内容

本研究では、堆積岩地域において、堆積環境、堆積プロセスに関する地質情報を、ボーリング孔など初期調査段階の限られたデータから抽出する手法について、幌延地域の声問層および稚内層を対象として検討するとともに、これらの地質情報を入力パラメータとし、堆積プロセスを考慮して堆積岩の岩相分布を推定するソフトウェアの開発を行った。

研究対象とした幌延地域の声問層および稚内層は、通常の泥岩と比べて SiO_2 成分を主体とする珪藻化石を多く含むことで特徴づけられる。これらの地層を肉眼で観察すると均質に見えるが、地層から放射される自然 γ 線量を測定する物理検層データにおいては、鉱物組成の違いに起因すると考えられる不均質性が捉えられている（山本ほか，2002a）。自然 γ 線は粘土鉱物に含まれる K-40 などに由来するとされ、自然 γ 線量は、物理検層解析における粘土鉱物量推定の指標として一般に用いられており（Schlumberger，1989）、粘土鉱物を構成する成分（たとえば Al_2O_3 ）の含有量ともよい相関を示す。

幌延地域の珪質岩の不均質性は、陸域から供給された細粒碎屑物や粘土鉱物からなる陸源堆積物と、海域で発生し海底に堆積した珪藻化石の含有量の違いとして捉えることができるものと考えられる。そこで本研究では、堆積岩の堆積環境や岩石物性など、ソフトウェアの入力パラメータを設定する際に必要となる地質情報を得ることを目的として、幌延地域の珪質岩に含まれる珪藻化石の含有量の推定を試みるとともに、珪藻化石の含有量の違いと、間隙率や細孔径分布といった堆積岩物性との関係について検討を行った。

まず、幌延の深地層の研究施設計画でボーリング調査を行った HDB-1 孔（山本ほか、

2002a) より、自然 γ 線量の変化に着目して 9 つの深度を抽出し、それぞれの深度について、自然 γ 線量の違いに基づき 2 個ないし 3 個のコア試料を採取し、蛍光 X 線全岩化学組成分析（ガラスビード法）を実施した。試料採取深度を図 3.1.1-14 に示す。

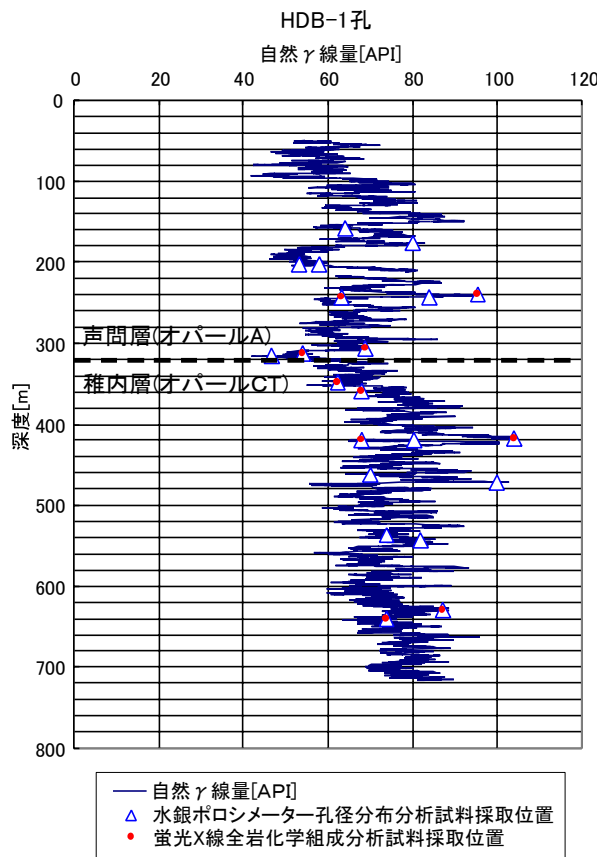


図 3.1.1-14 自然 γ 線検層結果と試料採取深度（HDB-1 孔）

分析の結果、声問層および稚内層の SiO_2 含有量は、概ね 75 wt% から 80 wt% の範囲にあることがわかった。これは、わが国の一般的な泥質岩の SiO_2 含有量（一国, 1972）が約 60 wt% であることと比較して高く、本地層中に珪藻起源の SiO_2 成分が含まれることが示唆される。

木村ほか（2003）は、秋田県男鹿半島に産する泥質岩の化学組成分析を行い、珪藻化石を多く含む女川層の硬質頁岩の SiO_2 含有量が 80 wt% を超えているのに対し、堆積環境が異なり、珪藻化石を有意な量含まない西黒沢層の頁岩では、 SiO_2 含有量が 60 wt% 程度であることを示している。また、産業技術総合研究所の岩石標準試料データベースにおける泥質岩の標準試料（登米粘板岩）においても SiO_2 含有量は 60 wt% 程度である（独立行政法人産業技術総合研究所、ホームページ）。

そこで、 SiO_2 含有量と粘土鉱物の含有量の指標となる Al_2O_3 含有量の比に着目し、幌延地域の珪質岩における珪藻化石含有量の簡便的な推定を試みた。すなわち、珪藻化石を有意な量含まない泥質岩における $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 含有量比として、産業技術総合研究所の泥質岩の標準試料（登米粘板岩, JSL-1）の分析値より導いた値（=3.38）を標準値とし、幌延の深地層の研究施設計画のボーリング調査で採取した珪藻質泥岩に含まれる SiO_2 成分のうち、標準値を超えるものを珪藻化石に由来する成分とすることとした。

HDB-1 孔より採取した試料について、珪藻化石起源の SiO_2 含有量を試算した結果、幌延地域の珪質岩に含まれる珪藻化石は、概ね 30 wt% から 50 wt% の範囲にあるものと推定することができた（図 3.1.1-15）。

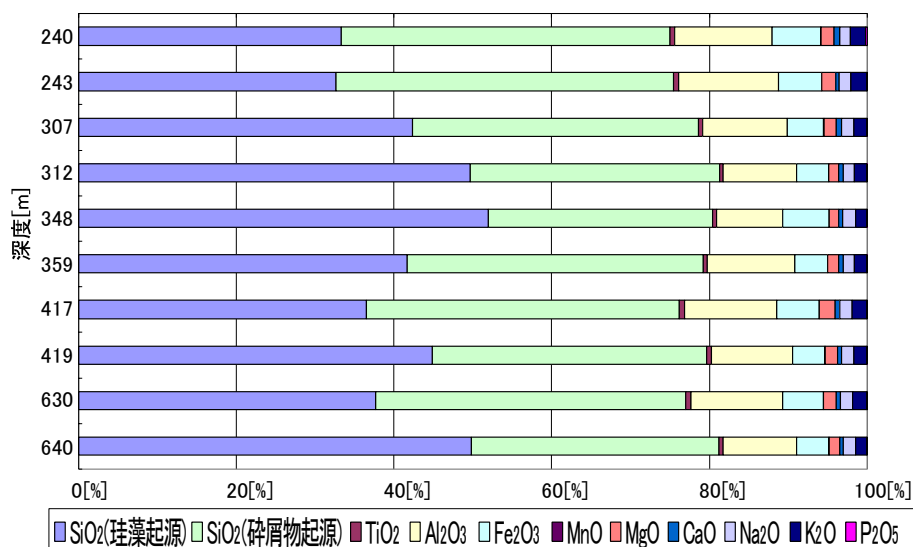


図 3.1.1-15 蛍光 X 線全岩化学組成分析結果
(SiO₂ (珪藻起源) は珪藻起源 SiO₂ 成分の試算結果)

次に、珪藻化石の含有量の違いと、間隙率や細孔径分布などの堆積岩物性との関係について検討を行う。図 3.1.1-16 は、各深度より採取した珪質岩について、水銀圧入ポロシメーターを用いて測定した細孔径分布を、累積曲線で示したものである。水銀圧入ポロシメーターは、直径 1 cm 程度の試料に圧入した水銀の量から細孔径分布を測定する装置である。細孔径分布累積曲線からは、埋没深度の増加に伴って、珪質岩の細孔径分布が小孔径側にシフトする傾向や、試料に圧入される水銀の量が少なくなり、間隙率が低くなる様子を読み取ることができる。

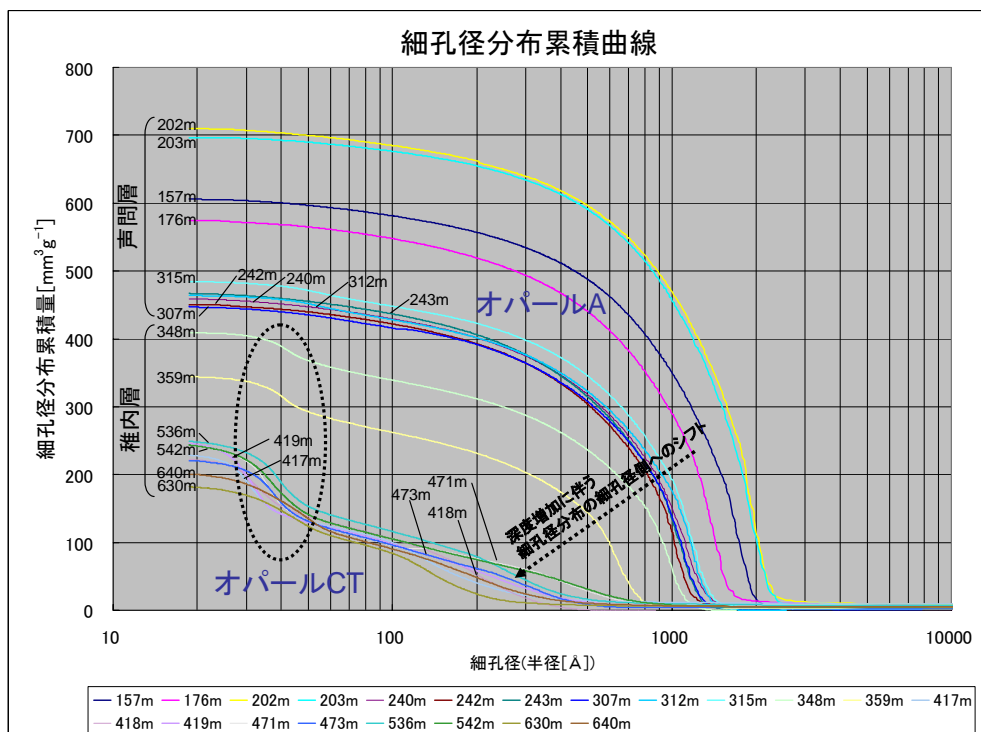


図 3.1.1-16 水銀圧入ポロシメーターによる珪質岩の細孔径分布測定結果

たとえば、声間層では 1,000 Å 付近で累積曲線が急激に立ち上がっており、この付近に細孔径分布が集中していることを示している。細孔径分布の集中は、深い深度で採取した試料ほど小孔径側にシフトする傾向にあり、稚内層では数百 Å 付近に集中が見られる。これは、

埋没深度の増加に伴う地層の圧密を反映しているものと考えられる。これとは別に、稚内層の試料では数十 Å 付近にも細孔径分布の集中（図中に楕円で示した付近）が見られる。この数十 Å 付近の集中については、続成作用によって珪藻化石がオパール A 相からオパール CT 相に相変化することに伴う微細な鉱物の生成（佐藤，2003a）と関連があるものと考えられる。

ここで、水銀圧入ポロシメーターより得られた細孔径分布のデータと、地層の化学組成との関係について、より詳細な検討を試みる。表 3.1.1-4 は、HDB-1 孔より採取した珪藻質泥岩試料における珪藻起源および陸源砕屑物起源の SiO₂ の量ならびに、水銀圧入ポロシメーターを用いて測定した中央細孔径値、間隙率、比表面積をまとめたものである。採取深度が近接するそれぞれの試料（240-243m, 307-312m, 348-359m, 417-419m, 630-640m）について分析結果を比較した場合、中央細孔径値と珪藻起源の SiO₂ の含有量との関係は、声問層と稚内層で逆の傾向を示している。すなわち、声問層では珪藻起源の SiO₂ の含有量が多くなると中央細孔径値が大きくなる。これに対し、稚内層では、声問層との境界部に近い深度で採取した試料（348-359m）を除いて、珪藻起源の SiO₂ の含有量の多い試料ほど中央細孔径値が小さくなる傾向が見られる。

表 3.1.1-4 珪藻含有量と中央細孔径値・間隙率・比表面積の関係

採取深度 [m]	地層名	岩質	SiO ₂ (珪藻起源) [wt%]	SiO ₂ (砕屑物起源) [wt%]	中央細孔径 値 [Å]	間隙率 [%]	比表面積 [m ² g ⁻¹]
240.38~240.48	声問層	珪藻質泥岩	33.34	41.60	787	51.53	28.02
243.70~243.80	声問層	珪藻質泥岩	32.66	42.71	756	51.34	29.26
307.09~307.21	声問層	珪藻質泥岩	42.30	36.26	778	49.72	28.57
312.84~312.91	声問層	珪藻質泥岩	49.66	31.56	810	50.91	29.02
348.25~348.45	稚内層	硬質頁岩	51.93	28.40	618	47.28	44.77
359.00~359.10	稚内層	硬質頁岩	41.67	37.47	405	43.60	51.80
417.15~417.25	稚内層	硬質頁岩	36.47	39.65	75	34.38	82.83
419.45~419.55	稚内層	硬質頁岩	44.83	34.79	58	34.37	94.56
630.10~630.20	稚内層	硬質頁岩	37.66	39.31	88	30.54	55.30
640.90~641.00	稚内層	硬質頁岩	49.82	31.39	81	32.73	60.66

また、間隙率については、声問層において珪藻起源の SiO₂ の含有量の多い試料ほど間隙率が高くなる傾向が見られる。さらに、比表面積については、稚内層において、珪藻起源の SiO₂ の含有量の多い試料ほど比表面積が大きくなる傾向が認められる。これらの原因として、声問層（オパール A 相）の泥岩中においては、泥質堆積物に比べて粒子径の大きい珪藻化石がそのままの形状で保存されている（佐藤，2003a）ため、珪藻化石は泥岩中において、中央細孔径値や間隙率を増加させる方向に寄与しているのに対し、稚内層（オパール CT 相）の泥岩中においては、珪藻化石が細粒な鉱物の集合体に相変化する（佐藤，2003a）ため、珪藻化石は、泥岩の細孔径分布を小さくさせ、かつ、比表面積を大きくする方向に寄与していることが考えられる。なお、深度 359m で採取した試料の中央孔径値は、直上の深度 348m で採取した試料に比べて細孔径分布が大きく小孔径側にシフトしており、間隙率の目安である細孔径分布累積量も大きく減少している。これについては、佐藤（2003a）の指摘するオパール A 帯からオパール CT 帯に鉱物相が変化することに伴う細粒な鉱物の生成の影響が顕在化した可能性が考えられる。

本研究では、これまでに述べたようなシミュレーションモデルの入力パラメータに資する地質情報の抽出と並行して、堆積岩の不均質場の特性をモデル化し定量的に把握する手法、すなわち、堆積プロセスを考慮した数値シミュレーションにより堆積物の分布を再現するソフトウェアの開発を行った。本ソフトウェアにおいて、堆積岩の形成過程は、堆積物が堆積する過程（堆積プロセス）と、埋没に伴う圧密を受けて固化する過程（圧密プロセス）より構成される。

図 3.1.1-17 は、堆積物と堆積プロセスの概念図である。堆積物は、砂質物、泥質物、珪藻の 3 種類とし、また性質の異なるふたつの堆積様式、すなわち 1 次堆積物（定常的な堆積作用）と 2 次堆積物（乱泥流のような重力流による堆積作用）を設定した。海岸線は直線であると仮定し、水深および 1 次堆積物の堆積速度は海岸線からの距離の 1 次関数とした。2 次堆積物の堆積量は、海岸線上のある定点からの 2 次関数とし、流体力学を基礎にして各々の粒子の運搬様式を数値化し計算した結果を関数に反映させた。

図 3.1.1-18 は、圧密プロセスの概念図である。圧密プロセスのモデルは、地層の埋没に伴う各堆積物の間隙率の変化を深度の関数（圧密曲線）として定義し、埋没深度より堆積岩の間隙率を推定した。また、各堆積物種の基質部の透水係数は間隙率の関数として推定を試みた（Bryant et al., 1975 ; Berg, 1975）。

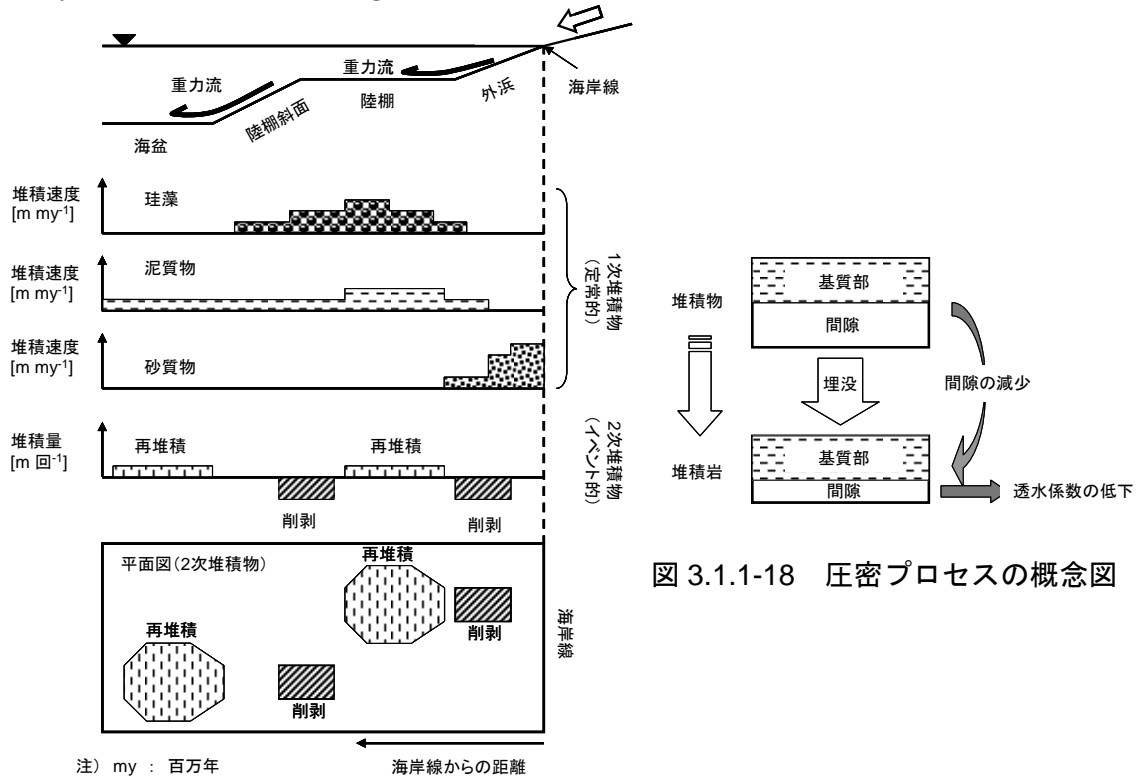


図 3.1.1-17 堆積物と堆積プロセスの概念図

図 3.1.1-18 圧密プロセスの概念図

図 3.1.1-19 に、ソフトウェアのテストラン結果を示す。テストランでは、場所を特定せず、地層を構成する堆積岩の種類や鉱物組成の特性、堆積構造、地層の厚さ、地層中に含まれる化石などのデータに基づき、堆積環境の周期的変化や堆積物を運搬・堆積させるメカニズムについて、仮想のパラメータを設定した。対象地域（20 km×20 km×1,000 m）は 80 万セル（=80×100×100）に分割した。

対象とする堆積物は砂岩・泥岩・珪藻の 3 種類とし、2 次堆積作用、海岸線位置変動、2 次堆積作用の発生頻度、最大埋没深度などを変化させたシミュレーションを実施した。

図 3.1.1-19（左図）は、シミュレーションで再現した砂質堆積物の分布であり、2 次堆積作用によって再堆積した砂質堆積物の分布域を堆積物比率で示している。また、図 3.1.1-19（右図）は、同じシミュレーション結果における間隙率分布である。同一堆積面において、図面奥の間隙率が高く（赤色）、図面手前で低く（黄緑色）表れているのは、埋没深度を図面奥で浅く、図面手前で深く設定したことが影響している。

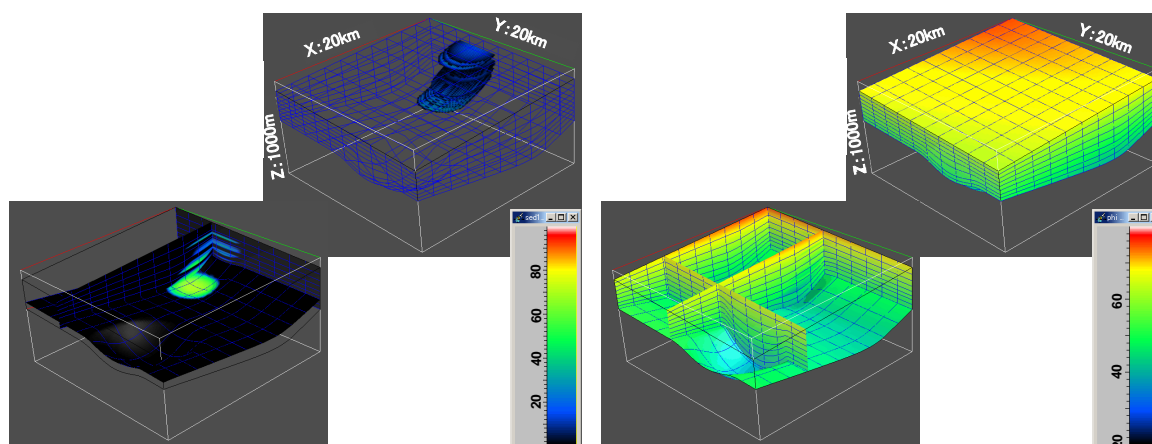


図 3.1.1-19 ソフトウェアの出力情報の 3 次元表示例
 左：2 次堆積作用で堆積した砂質堆積物の分布，スケールバーは堆積物比率
 右：間隙率の分布，スケールバーは間隙率
 （各図において右上側が堆積物の供給方向）

(3) 結論

本研究では、堆積岩地域を対象とした岩相分布について、堆積プロセスを考慮した推定手法を提示し、それに基づいて堆積岩地域における岩相分布の形成過程を再現するソフトウェアの開発を行った。

また、ソフトウェアの開発と並行して、ボーリング孔など初期調査段階の限られたデータから、ソフトウェアの入力パラメータに資する、堆積環境や堆積プロセスに関する地質情報を抽出する手法について検討を行った。その結果、以下の地質情報を得ることができた。

蛍光 X 線全岩化学組成分析結果に基づき、珪藻起源の SiO_2 のおおよその含有量を推定する手法について検討を行った。その結果、声間層および稚内層には 30 wt% から 50 wt% 程度の珪藻起源の SiO_2 が含まれる可能性が示された。この値は、ソフトウェアの入力パラメータとしての珪藻化石含有量の設定幅に反映できるものと考えられる。

水銀圧入ポロシメーターを用いて測定した細孔径分布を検討した結果、珪藻化石がオパール A 相からオパール CT 相へ変化することに伴って、珪質岩の細孔径および間隙率が大きく減少することが示唆された。これらは、相変化に伴う間隙率や透水係数の変化をパラメータ化する際の基礎データとなるものと考えられる。

(4) 今後の検討課題

珪質岩における物質移行特性に影響を与えると考えられる鉱物の相変化に伴う細孔径分布や間隙率と珪藻化石の含有量との関係について、幅広いデータを検討し、ソフトウェアの入力パラメータに反映させる。

また、本ソフトウェアを幌延地域に適用し、地質構造の推定を試みるとともに、ボーリング孔での調査結果に関するブラインドテストなどを通じて、シミュレーション結果の妥当性を検討する。

シミュレーションに際しては、得られた地質情報から想定される範囲で入力パラメータを変化させ、複数のケースの岩相分布を推定するなどして、地質構造モデルを推定する際の不確実性の具体化への本手法の適用可能性を検討する。

さらに、地質統計法など従来のモデリング手法と比較し、本手法の特徴を明確にしたうえで、従来の手法との組み合わせによる、より精度の高い地質構造モデル推定手法についての検討を行う。

3.1.1.5 地下水流動解析結果の不確実性定量化技術の開発

(1) はじめに

第2次取りまとめでは、幅広い地質環境を対象に、処分場のレイアウトを考慮せずに、簡略かつ保守的に設定した地下水移行経路に基づく安全評価が実施されている。実際の地質環境を対象とした安全評価においては、処分場を含む地下水の涵養域から流出域までの比較的大きなスケールを対象とした地下水流動評価に基づいて、より現実的な核種移行経路を抽出する必要がある。この場合、地下水流動評価の対象は数キロメートルスケールに及ぶ比較的広範な領域となり、そのスケールに対して取得可能なデータの量は限られる。そのため、水理地質構造モデルの構築からそのモデルを用いた地下水流動解析、評価といった一連の過程に種々の仮定や主観的判断などの様々な不確実性が含まれることになる。図 3.1.1-20 は水理地質構造のモデル化に介在する不確実性を、地質構造モデルの不確実性と水理特性値の不確実性に分類して、それぞれの不確実性の定量化とそれらを用いた地下水流動評価の流れを整理したものである。断層の有無やその地質学的性状（走向傾斜、厚さ、長さなど）などの地質構造モデルの不確実性は調査データの不足などに起因しており、これまでは主観的判断に基づく設定などがなされてきた。近年では、その主観的な確信の程度を定量化する手法開発など、不確実性の定量的評価の試みが行われている（分冊 1 4.2.6 項参照）。透水係数などの水理特性の不確実性は空間的な不均質性に対して調査データの量が不足していることなどに起因しており、地球統計法などを用いた透水係数分布の推定とその不確実性の定量的評価が検討されている（Deutsch and Journel, 1998）。

地下水流動解析には、決定論的な水理地質構造モデルを用いた解析や、上述のデータに起因した不確実性を考慮した上下限値の幅などを用いた感度解析を行うのが一般的である。この場合には、入力パラメータの不確実性が解析結果に及ぼす影響を直接的に求めることができない。このような課題を解決するために、近年では、上述の不確実性の定量的評価に基づいた統計的な検討が行われている。このような統計的な検討については、不確実性の定量的評価の結果から得られた統計量に基づくモンテカルロ法を用いた解析検討例が示されている。モンテカルロ法は、設定された統計量から確率的にサンプリングされた値の組み合わせにより決定論的な数値モデルを作成したうえで、このモデルを用いた解析を複数回繰り返して、結果の統計量を評価するものである。このため、空間的に隣接する場所で透水係数推定値の分散が大きく異なる場合などの複雑な条件にも柔軟に対応可能であり、1回の解析には既存の浸透流の数値解析コードを適用することができるという利点がある。その一方で、統計的に有意な数の解析を実施する必要があるが、その解析数の決定方法が曖昧で、解析時間が膨大になる傾向があるという欠点がある。このような課題に対して、確率有限要素法を地下水流動解析に適用して水頭や流速ベクトルなどの確率分布を求める手法が提案されている（嶋田ほか, 1990 ; 田中, 1998）。この手法は、上述の不確実性の定量的評価結果を入力パラメータとして、解析結果の誤差を直接的に求めることができるという利点がある。

以上の観点から、本研究では、確率有限要素法の利点に着目して、確率有限要素法を地下水流動解析に適用して流速ベクトルなどの確率分布を求め、得られた流速ベクトルの確率分布から地下水移行到達点（もしくは移行経路長）の不確実性を定量的に評価する手法について検討した（吉野ほか, 2004）。また、原位置のデータを用いた検討事例として、本手法を用いて鉛直2次元断面を対象に任意点からの地下水移行到達点の不確実性評価を行い、モンテカルロ法を用いた解析結果と比較してその有効性について検討した。

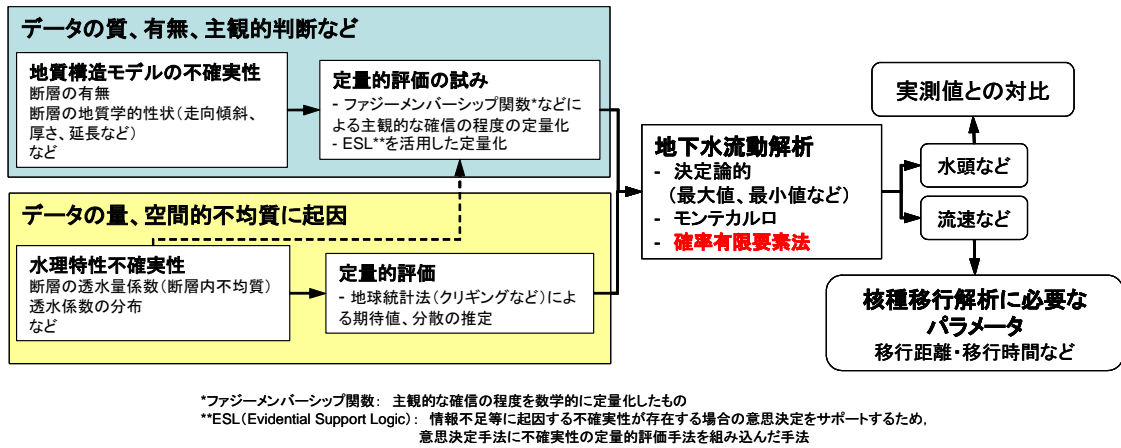


図 3.1.1-20 水理地質構造のモデル化に介在する不確実性と地下水流動評価の流れ

(2) 研究内容

確率有限要素法を地下水流動解析に適用して求めた流速ベクトルの確率分布を用いて、特定の移行経路における移行距離の不確実性を評価する方法について説明する。図 3.1.1-21 に示すような空間において、位置 O にあった地下水が時間 t [s] 移行した後の位置を P とする。位置 O を原点として図に示すように x, y 軸をとると、位置 P の座標 (X_t, Y_t) は次式で表される。

$$\begin{Bmatrix} X_t \\ Y_t \end{Bmatrix} = \int_0^t \begin{Bmatrix} v_x \\ v_y \end{Bmatrix} dt \tag{3.1.1-1}$$

ここで、v_x: 流速ベクトルの x 成分 [m s⁻¹]
 v_y: 流速ベクトルの y 成分 [m s⁻¹]

0~t を微小な時間間隔 Δt [s] で N_t 等分 (Δt = t/N_t) すれば、(3.1.1-1)式右辺の時間積分は次式に示すように離散化された総和式で近似できる。

$$X_t = \int_0^t v_x dt \cong \Delta t \sum_{i=1}^{N_t} v_{x((i-1)\Delta t)} \tag{3.1.1-2}$$

ここで、解析対象領域を有限要素で分割し、各要素の透水係数は、各々の期待値が 0 であるお互いに独立した M 個の確率変数 {α₁, α₂, ..., α_M} ≡ α で表されるものとする。あるひとつの要素 e 内では、地下水の流速ベクトルおよび α に関する流速ベクトルの偏微分がそれぞれ一定であるとすると、(3.1.1-2)式について線形 1 次近似理論を適用することにより、X_tの期待値 E(X_t)と分散 Var(X_t)が以下の式で表される。

$$E(X_t) \cong \sum_{e=1}^{N_e} \left\{ v_{x(e)} \Delta t_{(e)} \right\}_{(\alpha=0)} \tag{3.1.1-3}$$

$$Var(X_t) \cong \sum_{m=1}^M \left\{ \sum_{e=1}^{N_e} \left(\frac{\partial v_x}{\partial \alpha_m(e)} \Delta t_{(e)} \right)_{(\alpha=0)} \right\}^2 Var(\alpha_m) \tag{3.1.1-4}$$

ここで、
 N_e : α = 0 のときの点 O から点 P に至る移行経路を含む要素の個数
 v_{x(e)} : これらの要素のうち e 番目の要素の x 方向流速ベクトル成分 [m s⁻¹]

$\Delta t_{(e)}$: e 番目の要素内にある間の移行時間 [s]

$\partial v_x / \partial \alpha_{m(e)}$: e 番目の要素における α_m に関する x 方向流速の偏微分 [$m s^{-1}$]

なお Y_t についても同様に算出できる。また、到達点 P の期待値 $\pm 1\sigma$ の予測範囲（正規分布の確率密度関数の $\pm 1\sigma$ で約 68.3%）は、図 3.1.1-21 に示すような $(E(X_t), E(Y_t))$ を中心として、 $\sqrt{Var(X_t)}$ と $\sqrt{Var(Y_t)}$ を長軸もしくは短軸とする楕円で表記する。

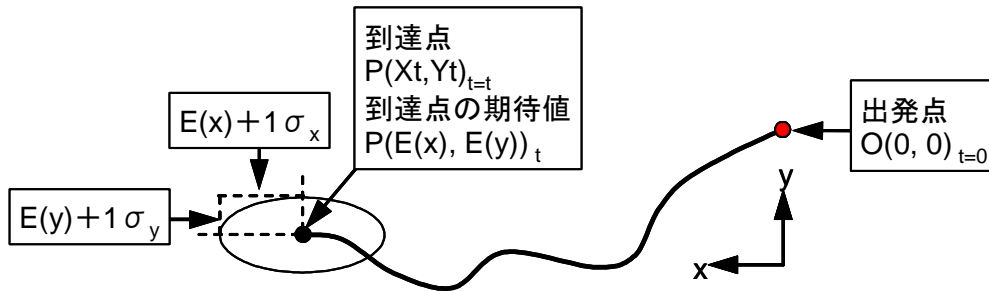


図 3.1.1-21 任意点からの移行到達点の予測範囲概念図

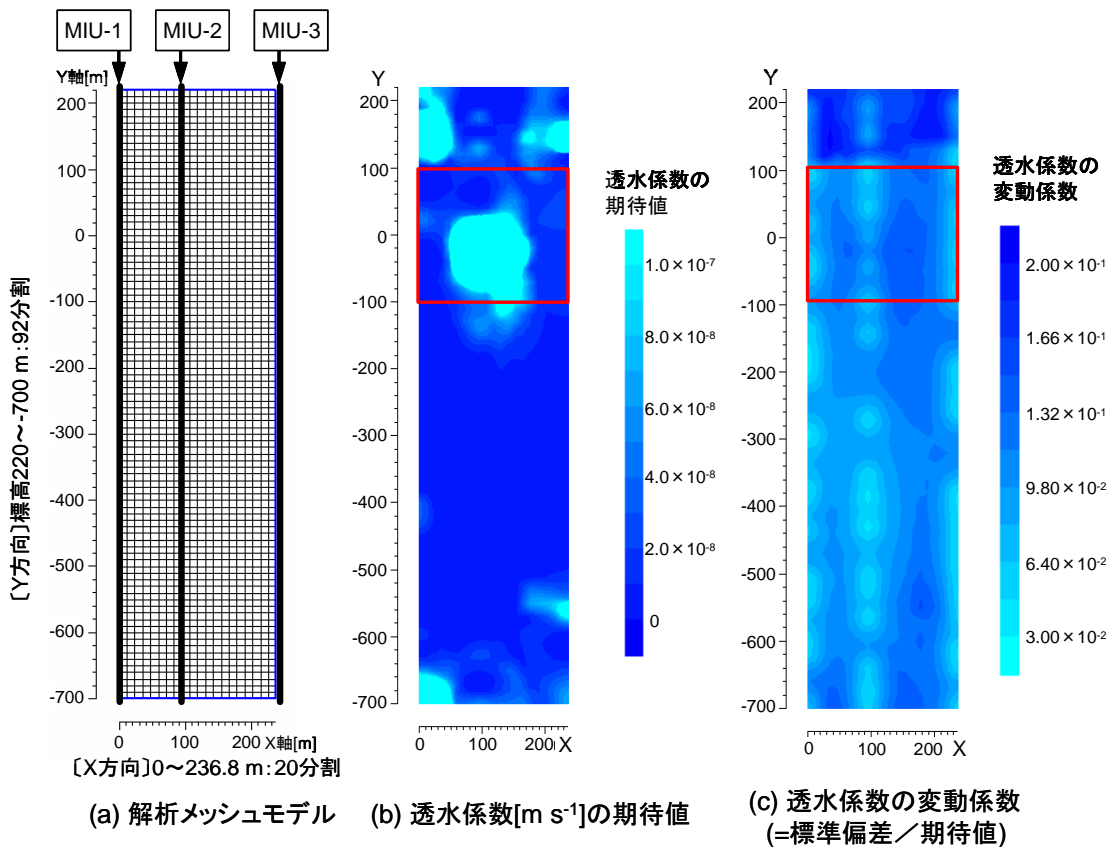
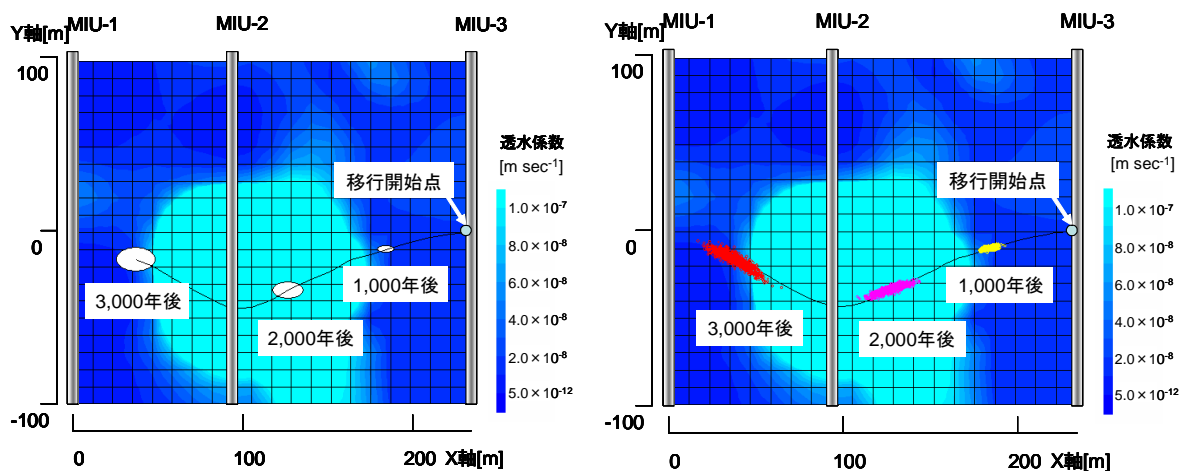


図 3.1.1-22 透水係数分布（期待値）の推定結果とその変動係数分布

本手法を用いた解析事例として、瑞浪の深地層の研究施設設計画における正馬様用地の MIU-1~3 孔のボーリング孔データ（中野ほか，2001）を用い、これらのボーリング孔を含む鉛直 2 次元断面を対象領域とした解析検討を実施した。本対象領域は、上部に堆積岩（瑞浪層群など）、下部に花崗岩（土岐花崗岩）が分布する地質構造となっている。MIU-1~3 孔から得られた透水係数などの離散的なデータについて、ここでは、透水係数分布に空間的相関がある場合の解析例として、対象領域に対して、地球統計学的空間予測手法のひとつであるクリギング（Kriging, 1952）による空間的なデータの補間を行った。図 3.1.1-22 に解析対

象領域の透水係数分布の推定結果を示す。同図には推定した透水係数の標準偏差と期待値の比から求めた透水係数の変動係数も示す。

図 3.1.1-22 に示した透水係数分布から、確率有限要素法を用いた浸透流解析により地下水の流速ベクトルの確率分布を求めるとともに、本手法を用いて、任意の地点からの地下水の移行距離の不確実性を求めた。また、その比較のため、モンテカルロ法を用いた地下水流動解析および粒子追跡法による移行経路解析も併せて実施した。特定の移行経路における移行距離の不確実性評価の一例として、本手法とモンテカルロ法のそれぞれの手法について、MIU-3 孔の深度 236.48 m (海拔 0 m) を出発点とした場合の 1,000 年、2,000 年、3,000 年後の到達点の予測範囲を図 3.1.1-23 に示す。なお、図 3.1.1-23 は図 3.1.1-22 に示した透水係数分布のうち、赤線で示した部分を拡大して示している。また、図 3.1.1-23(a)に示した地下水の移行到達点の分布は、標準偏差 σ の 3 倍を軸に持つ楕円で表している。



(a)本手法による解析結果
(楕円は移行到達点の 3 σ の範囲)

(b)モンテカルロ法による解析結果

図 3.1.1-23 移行到達点の不確実性の定量的評価結果例

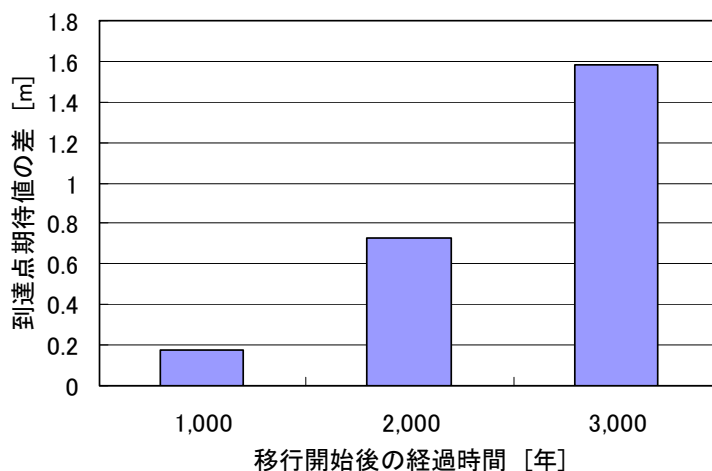


図 3.1.1-24 本手法とモンテカルロ法の到達点期待値の差

図 3.1.1-24 に、MIU-3 孔の深度 236.48 m を出発点とした場合の本手法とモンテカルロ法の移行到達点の期待値の差を示す。3,000 年後においても、200 m 程度の移行距離に対して 1.6 m 程度の差であり、モンテカルロ法と本手法はほぼ整合した結果が得られることが分かった。図 3.1.1-25 に、本検討例に要した解析時間を示す。これらの解析にはウインドウズ系

のパーソナルコンピュータを用いた。解析時間の差は主に地下水流動解析に要する時間の差であり、本検討例においては、確率有限要素法の解析に要する時間はモンテカルロ法における 60 回分程度の試行に要する計算時間に相当することが分かった。

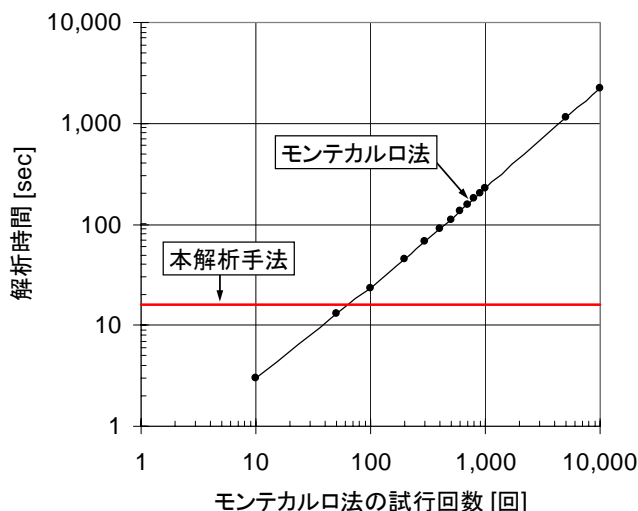


図 3.1.1-25 確率有限要素法と本手法を用いた解析時間とモンテカルロ法による解析時間の比較例

(3) 結論

地下水流動解析による地下水の移行経路評価に際して、透水係数の不確実性が移行経路や到達範囲の算出結果に及ぼす影響の定量化手法として、確率有限要素法を地下水流動解析に適用して求めた流速ベクトルの確率分布を用いて、特定の移行経路における移行距離の不確実性を評価する方法を提案した。また、比較的小規模な鉛直断面を対象とした事例検討を行いモンテカルロ法を用いた解析と比較を行った。その結果、移行距離と到達点の予測範囲に関して、両手法でほぼ同程度の結果を得ることができ、本手法の計算時間がモンテカルロ法の試行回数の数十回分程度であることが分かった。

モンテカルロ法は、決定論的な数値モデルを用いた解析を多数回繰り返して結果の統計量を評価するため、空間的に隣接する場所で透水係数の分散が大きく異なる場合などの複雑な条件にも柔軟に対応可能であるという利点がある。その一方で、統計的に有意な解析回数決定方法が曖昧で、解析時間が長くなる傾向があるという欠点がある。本研究で提案した方法は、透水係数分布などの入力パラメータ値の不確実性が定量的に評価されなければならないという制約条件があるものの、それらの値から数値解析結果の誤差を直接的に求めることが可能で、計算時間がモンテカルロ法の試行回数の数十回分程度であり比較的効率的であるという利点がある。したがって、不確実性の定量化の状況や不均質性の程度などに応じて、両者の手法をお互いに補完的に活用できるものと考えられる。

(4) 今後の課題

今後、実際の地質環境を対象とした場合には、数キロメートルスケールの 3 次元の地下水流動評価が必要となる。この場合、数値モデルの計算容量が膨大になるため、いかに効率的に計算を実施できるかが課題のひとつとして挙げられる。本研究で提案した解析手法の計算効率については、比較的小規模な鉛直断面を対象とした検討により計算効率が良いことを示したが、3 次元かつ大規模計算への適用に際しては、確率有限要素法による浸透流解析の計算効率についての検討が必要である。

3.1.2 亀裂を対象とした水理・物質移行現象の理解

第2次取りまとめで用いた天然バリア中核種移行解析においては、亀裂中の移流・分散、基質部へのマトリクス拡散を考慮した均質な1次元平行平板モデルがレファレンスケースモデルに用いられている。しかしながら、実際の亀裂の内部構造は、不均質に分布する開口幅や亀裂内を部分的に充填しているガウジや脈などの亀裂内充填物質を有しているほか、変質した基質部も存在する場合があります。そこではより複雑な現象が生じていると考えられる。開口幅の不均質性や亀裂内充填物質は、亀裂内の地下水流れが卓越した部分（チャンネル）やこのチャンネルに対して流れが停滞している澱み域への流れなどの不均質な地下水流れを生じさせる。また、亀裂内充填物質はチャンネル流れなどの亀裂内の地下水流動に影響を与えるだけでなく、充填物質自体への物質の移行と収着遅延や充填物質を介した基質部への核種の拡散など、より複雑な移行プロセスを生じているものと考えられる。このような亀裂開口幅の不均質な分布特性や亀裂内充填物質は、岩種や地域などの処分環境条件によって大きく異なり、サイトを特定しない第2次取りまとめの段階においては、それらが物質移行に与える影響の定量的な評価が困難であることから、亀裂内充填物質への物質の収着による遅延効果を保守的に無視するなどの仮定に基づいた核種移行評価が行われている。

第2次取りまとめ以降の研究課題として求められている、安全評価で扱う現象モデルの妥当性の確認に加えて、各バリアが本来有する物理・化学現象などが安全機能として重複的に働くことを示すことで安全上の裕度を確保すること（原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会、2004）、評価が過度に保守的にならないようなパラメータ値を検討すること（総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会、2003）など、現象理解に基づいたモデルやパラメータ値の提示（3.1.1項参照）に資するためには、上述のより複雑な事象・現象の理解とそれを評価体系へ適切な形で取り込む方法の検討が必要である。

研究の実施に際しては、不均質に分布する開口幅が地下水流動や物質移行に与える影響および亀裂内充填物質が物質移行に与える影響の検討について課題を設定するとともに、それらが複合的に作用して亀裂内の地下水流動や物質移行に与える影響についても検討を行った。それらの課題に応じて、前者は主に実験室における透水・トレーサー試験による検討を、後者については海外での地下研究施設などで実施された原位置試験データを活用した検討を実施した。

不均質に分布する開口幅が地下水流動に与える影響については、天然亀裂の平均的水理特性および亀裂交差部の水理特性に関する試験結果を3.1.2.1項で記述した後、3.1.2.2項で試験およびモデル化技術の開発の現状について述べる。3.1.2.3項では、亀裂内充填物質が物質移行に与える影響についての実験的検討に加えて、不均質に分布する開口幅が地下水流動や物質移行に与える影響などについて数値解析的検討を行った。加えて、数値解析的検討として、海外での地下研究施設で実施されたトレーサー試験データの解釈に際して開口幅分布や亀裂内充填物質などが複合的に作用する影響を検討した。これらは、複雑な事象・現象を適切に考慮した概念モデルの構築、評価上重要なデータの抽出などの評価手法の構築に資するものと考えられる。

なお、地下研究施設などで実施された原位置試験データからパラメータ値を評価する際には、原位置試験データそのものの不確実性や試験データを解釈する際に用いるモデルの自由度が増えることに起因した不確実性などに留意する必要がある。3.1.2.4項では、それらの不確実性の定量的評価手法について述べる。

3.1.2.1 天然亀裂を対象とした水理・物質移行特性データの取得

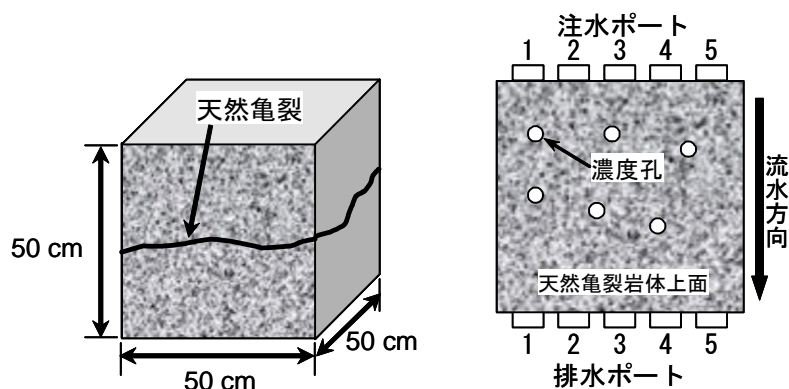
(1) はじめに

第2次取りまとめの母岩中の核種移行解析においては、岩盤の不均質性として透水量係数の不均質性に着目した1次元平行平板モデルを重ね合わせた手法をレファレンスケースモデルとして採用した。このような1次元平行平板モデルや不均質性の表現手法の信頼性を向上させるためには、①巨視的には岩盤中の移行経路としての亀裂のネットワーク構造の不均質性、②微視的には亀裂表面形状、充填物、ほかの亀裂との相互作用（亀裂の分岐や交差などに起因する亀裂内構造の不均質性）が、地下水の流れや物質移行現象に与える影響の把握が重要となる。

本研究では上記②に着目した課題として、不均質に分布する開口幅が地下水流動や物質移行に与える影響について検討するものとした。そのためのデータ取得として、天然の亀裂を含む岩体試料を用いた室内試験により、試料スケールでの亀裂の平均的な水理特性値として、上述の1次元平行平板モデルを仮定した場合に用いる亀裂の平均的な透水量係数と物質移行に寄与する開口幅を求めた（吉野ほか、2002）。また、上記②に着目した課題として、亀裂交差部に沿った方向の透水性が周辺亀裂部より高く、地下水流動の選択的経路を形成している可能性が指摘されていることから（たとえば、田中ほか、1994）、天然の亀裂を含む岩体試料を用いた室内試験により実測データを取得した（鐵ほか、2004a）。

(2) 研究内容

室内実験に用いた岩石試料は、釜石鉱山原位置試験場から採取し整形した天然の亀裂を含むものである（内田・吉野、2001）。そのうち単一の亀裂を含む岩石試料を用いて、亀裂状媒体水理試験設備（LABROCK）で透水・トレーサー試験を実施した。LABROCKで使用した50センチメートルスケール天然単一亀裂岩体（以下、「LABROCK試験岩体」という）は、図3.1.2-1に示すように高さ方向のほぼ中央に天然亀裂を有しており、岩体内部のトレーサー濃度を測定するために直径3cmの濃度測定孔を6つ削孔した。透水試験は、設定水頭差を11cm～31cmまで4cmごとに6段階で変化させて実施した。トレーサー試験は、それぞれのケースの透水試験の後、注水流量を変化させずに5つの注水ポートから同時にトレーサーを注入することで実施した。



①LABROCK試験岩体概念図 ②LABROCK試験岩体の上面図

図 3.1.2-1 LABROCK 試験岩体の模式図

透水試験結果から得られた亀裂の平均的な透水量係数から、1次元平行平板モデルを仮定した三乗則により水理学的開口幅（bh）を、トレーサー試験結果から物質移行開口幅（bt）をそれぞれ算出した（図3.1.2-2）。その結果、水理学的開口幅（bh）は物質移行開口幅（bt）よりも0.1 mm程度大きくなっていることが分かった。水理学的開口幅（bh）と物質移行開

口幅 (bt) の大小関係は亀裂内の不均質な開口幅の分布に起因し、Siliman (1989) は、地下水が流れる方向の開口幅の変化が大きな場合と、開口幅の変化が小さい場合の極端な事例について、1次元平行平板モデルを仮定した場合に得られる水理的開口幅 (bh) と物質移行開口幅 (bt) の大小関係を示している。それによれば、 $bh < bt$ の場合には地下水が流れる方向の開口幅の変化が小さく、 $bh > bt$ の場合には地下水が流れる方向の開口幅の変化が大きくなる。図 3.1.2-2 の結果から、LABROCK 試験岩体では $bh > bt$ となっており、試験で実施した流れ方向 (図 3.1.2-1②の矢印方向) の開口幅の変化が大きくなっている可能性がある。これについては、今後、レジン注入法による開口幅分布測定などにより検証していく予定である。

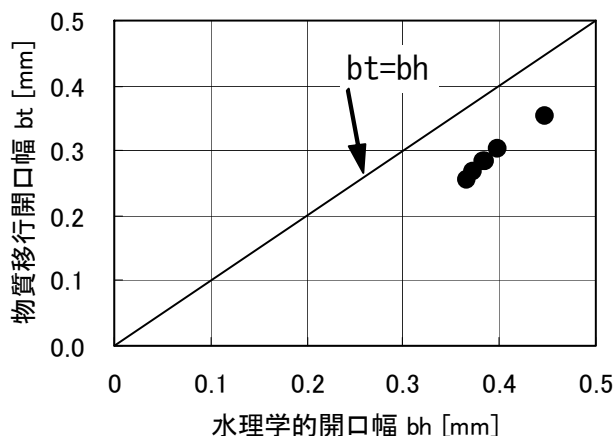
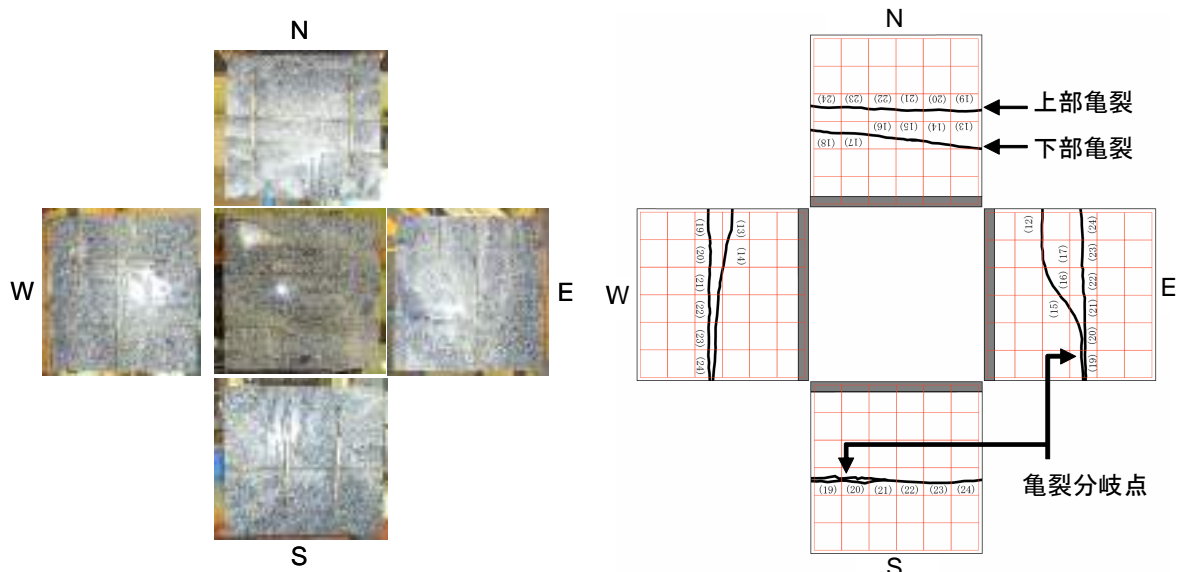


図 3.1.2-2 LABROCK 試験岩体の水理的開口幅 (bh) と物質移行開口幅 (bt) の関係

釜石鉱山から採取・整形した岩石試料のうち亀裂交差部を含む岩石試料を用いて、亀裂ネットワーク岩体水理物質移行試験設備 (NETBLOCK) による透水試験を実施した (山田ほか, 2001; 鐵・澤田, 2001; 鐵ほか, 2004a)。本試験では、亀裂交差部に沿った方向とその周辺の亀裂の水理特性の違いを把握することを目的とした。試験体は図 3.1.2-3 に示すような縦 50 cm, 横 50 cm, 高さ 47 cm のほぼ立方体で、複数の亀裂を有している。同図は試験体表面の様子を展開図で示しており、4つの側面名を N, E, S, W 面とした。図中には亀裂観察の結果得られた主要な亀裂のトレースを示している。試験体の主要な亀裂は 2 枚で構成されており、亀裂交差部は E 面および S 面それぞれの亀裂分岐点を通る線であると推定した。試験体の亀裂がある側面を 6×6 個に分割して注排水用のセルを設け、任意のセルを組み合わせて透水試験を行った。事前の予備透水試験でセル間の水頭差と単位時間流量の関係を調べたところ、制御可能な水頭差 (約 1 cm) 以上では動水勾配と単位時間流量の関係が比例関係を示さないことから、試験体内の水の流れは乱流状態で、結果として透水量係数を過小評価する可能性があった。そのため、水に重量比 0.2 %濃度のメチルセルロース系増粘剤を添加した高粘性流体による透水試験を実施した。

透水試験結果を図 3.1.2-4 に示す。この試験結果により、亀裂交差部に沿った透水性がその周辺の亀裂部の透水性と比較して数倍から十倍程度高いことが確認できた。



①NETBLOCK用岩体の側面の亀裂写真 ②NETBLOCK用岩体の展開した亀裂概念図

図 3.1.2-3 NETBLOCK 用試験体の概要図

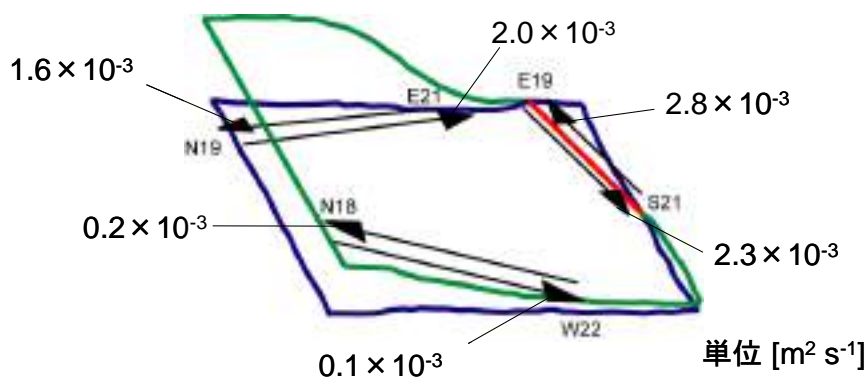


図 3.1.2-4 亀裂に沿った方向の透水量係数測定結果

(3) 結論

天然単一亀裂を対象とした透水試験・トレーサー試験から、亀裂の平均的な水理学的開口幅 (bh) と物質移行開口幅 (bt) の関係を検討し、その結果、試験に用いた亀裂は、透水試験を実施した方向の開口幅変化が大きい可能性があることが分かった。また、複数の天然亀裂を含む岩石試料を対象とした透水試験の結果から、亀裂交差部に沿った方向の透水量係数が周辺亀裂部に比べて大きいことが明らかとなった。

(4) 今後の課題

本研究では、天然の亀裂を含む 50 センチメートルスケールという比較的大きな試料を対象とした亀裂の水理特性データを取得した。このようなデータの活用には、複数の岩石試料から得られたデータからその特性を検討することが望ましいが、同様の天然の亀裂を含む比較的大きな岩石試料を数多く採取して試験を実施するのは困難である。今後は、亀裂内の不均質な開口幅分布が水理特性に与える影響を検討するために、本試験で使用した単一亀裂および亀裂交差部を含む試験体の詳細な亀裂開口幅を、レジジン注入法により測定する。そして、得られた開口幅分布データを用いて本試験で得られた結果を説明することで、1次元平行平板モデルなどの単一亀裂を対象とした水理・物質移行モデルおよびその入力パラメータ値の妥当性について検討する。

3.1.2.2 不均質な開口幅分布が水理・物質移行特性に与える影響検討のための基盤技術の整備

(1) はじめに

亀裂中の地下水流動や物質移行を表現したモデルには、第2次取りまとめにおける天然バリアを対象とした核種移行解析同様、1次元平行平板モデルが一般的に用いられる。しかし、亀裂内の地下水流動特性や物質移行特性は不均質に分布する開口幅の影響を強く受けており、3.1.2.1項ではその影響検討の一環として比較的大きな岩石試料を用いた室内実験により天然の亀裂の水理特性データを取得した。このようなデータの活用の際には、複数の岩石試料から得られたデータからその特性を検討することが望ましいが、同様の天然の亀裂を含む比較的大きな岩石試料を数多く採取して試験を実施するのは困難である。そのため、1次元平行平板モデルに用いる平均的な透水量係数や、物質移行に寄与する開口幅、流路幅などのパラメータ値のより信頼性の高い設定方法などについて検討するために、亀裂内を不均質に分布する開口幅が地下水流動や物質移行に与える影響を室内実験や数値実験を組み合わせで検討することとした。本検討に際しては、亀裂内の不均質な開口幅の影響が検討できるスケールと、特徴的な亀裂形状を有する複数の試料を対象とした場合に室内実験で取り扱いやすいスケールなどの観点から、主に10センチメートルスケールを対象とした。このような検討に必要な技術として、図3.1.2-5に示すように、単一亀裂を対象とした透水・トレーサー試験(①)、亀裂内間隙構造の詳細調査(②)とそこから得られたデータを用いた格子ガスオートマトン法(以下、「LGA法」という)による流体・物質移行の数値解析(③)、についての基盤技術の整備を行った。

本項では、上記①、②の実験的検討例について述べるとともに、③の実施に必要なツール整備として開発した数値解析コードの概要について述べる。

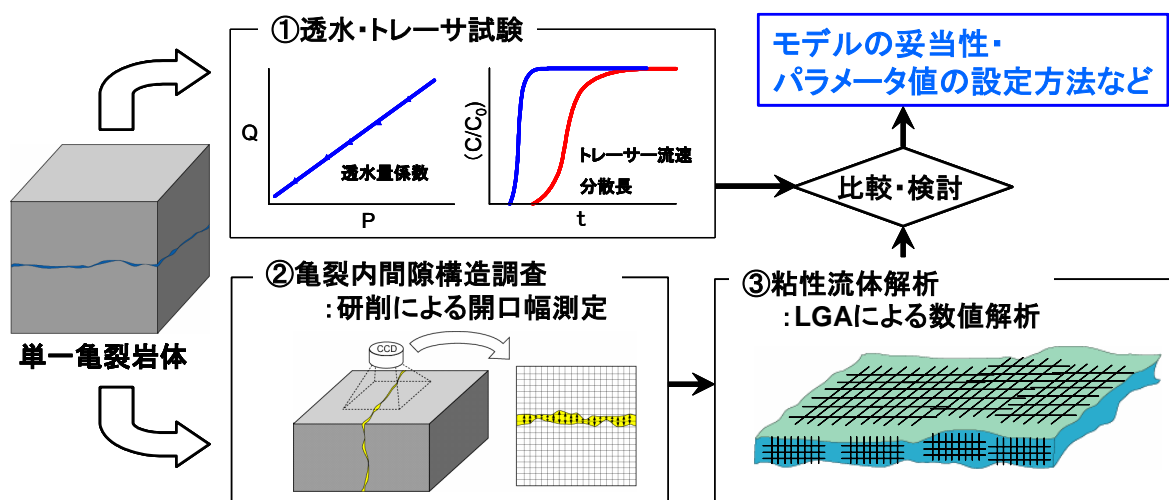


図 3.1.2-5 単一亀裂を対象とした研究のフロー

(2) 研究内容

(i) トレーサー試験方法の改良

単一亀裂の物質移行特性を把握するためのトレーサー試験の精度向上を目的として、10センチメートルスケールでの試験方法の改良を行った。また、平行平板試験体を用いて、試験測定データから算出される水理学的開口幅、および物質移行開口幅の精度についての検討を行った(佐藤・武部, 2004)。トレーサー試験の実施にあたり、亀裂開口部の容量が、配管や注排水ポートなどの容量(以下、「デッドボリューム」という)に比べて小さい場合には以下の問題が生じる。

- ・ トレーサーの移行時間がデッドボリュームにより遅延される

- ・ポート内でトレーサーが分散する
- ・トレーサーが一様に亀裂内を浸透しない

そこで、トレーサーの注入方法を改良して、デッドボリュームの影響を受けない試験方法を考案した。改良したトレーサー注入方法の概念図を図 3.1.2-6 に示す。注入方法の特徴として、注排水ポートでフラッシングを行う機構を取り付けている。亀裂内に比べて大きな流量で注水ポート内をフラッシングすることで、ポートに到達したトレーサーは速やかにポート内を置換し、電気伝導度計に到達する。また、排水ポートでは亀裂からポート内に到達したトレーサーはフラッシングにより速やかに電気伝導度計に達する。この方法により、配管および注排水ポートでのトレーサー移行時間の遅延の影響を取り除くことができる。また、トレーサーが速やかに注水ポート内を置換することから、トレーサーは一様に亀裂内に浸透し、ポート内での分散の影響は小さくなる。以上より問題点が解消され、より正確なトレーサー移行時間を求めることができるようになった。

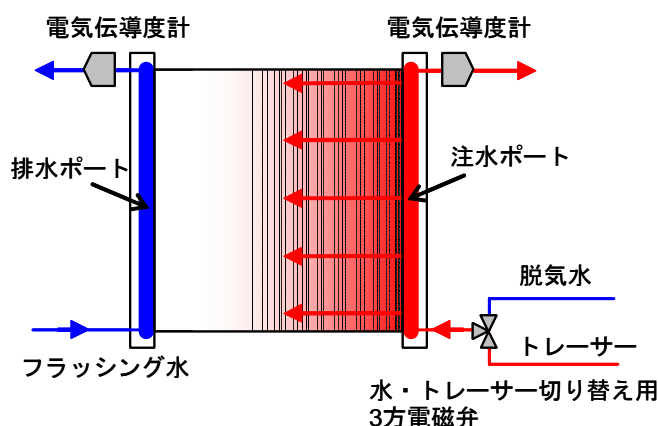


図 3.1.2-6 単一亀裂を対象としたトレーサー試験技術

この試験方法により、測定データより算出される開口幅の精度を確認するために、透明アクリルによる平行平板試験体を用いた試験を行った。この試験体は幅 10 cm、長さ 10 cm、厚さ 3 cm のアクリルブロックの間に一定厚さのスペーサーをはさんだものである。この試験体の幾何学的な開口幅は、接触式 3 次元測定装置 (図 3.1.2-7 参照) を用いて、組み立てた試験体の厚さと上下アクリルブロックの厚さの差から求めた。理想的な平行平板の場合、幾何学的開口幅、透水試験結果から三乗則を用いて得られる水理学的開口幅、およびトレーサー試験から得られる物質移行開口幅は等しくなることから、この試験体を用いた各開口幅が等しい値となれば、この試験方法により精度の高いデータを得ることができる。試験体の幾何学的開口幅 0.19 mm に対して試験から得られた結果は、水理学的開口幅 0.18 mm、物質移行開口幅 0.17 mm となった。3 つの値の差を 0.02 mm 以内に抑えることができたことによって、この試験方法の改良の効果を確認できた。

(ii) 亀裂開口幅測定技術

亀裂内間隙構造の不均質性に関する知見を深めるためには、亀裂開口幅を実際に計測し、測定データを取得する必要がある。その測定手法として、接触式 3 次元測定装置による手法、X 線 CT (X Ray Computed Tomography) による手法 (Yoshino et al., 2003)、研削による手法 (鐵ほか, 2004b) の 3 手法を提案し、それらに関する検討を実施した。それぞれの開口幅測定方法の模式図を図 3.1.2-7(i)~(iii) に示す。

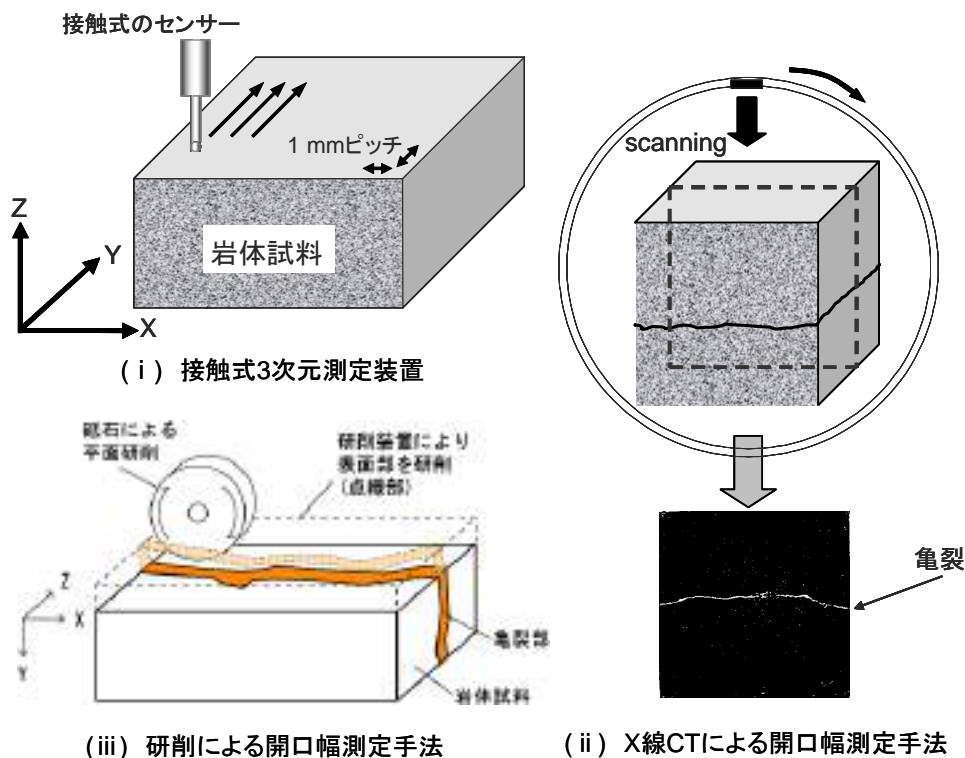


図 3.1.2-7 様々な開口幅測定手法の模式図

これらの開口幅測定手法には、それぞれ長所・短所がある。接触式 3 次元測定装置は、亀裂面を直接的に測定するため、亀裂表面形状の正確な測定が可能であり測定誤差も小さい。しかし、亀裂表面形状の測定において亀裂面を一度引き離すため、元の亀裂面の噛み合わせの状態を再現することが困難である。また複数の亀裂が交差する場合には適用できない。

X 線 CT は、非破壊で岩石内部の亀裂開口部を観察することができ、複数の亀裂が存在する場合にも観察が可能という利点がある。しかし全体の概略的な傾向を把握することはできるが、X 線 CT の測定限界（分解能）の問題や造岩鉱物の不均質性が CT 値に及ぼす影響により、微細な亀裂開口幅分布を正確に把握することは困難である。

研削による亀裂開口幅測定は、亀裂の開口幅や形状を直接計測することが可能であるため、信頼性の高いデータの取得が期待できる。ただし、亀裂部にレジンなどの固化材料を注入して研削するため、透水試験などのほかの試験終了後にしか実施できないほか、研削に時間を要し、研削により試料が残らないなどの短所がある。

このような長所・短所を考慮したうえで、これらの 3 手法を目的に応じて使い分ける必要がある。なお、3.1.2.1 項で用いた 50 センチメートルスケールの試験岩体の開口幅測定には、比較的大きな岩石試料にも適用可能で、亀裂開口幅を直接測定可能であるという利点から、研削による亀裂開口幅測定法を適用する。

これら 3 種類の開口幅測定手法を用いた開口幅測定例として、人工的に割裂した単一亀裂を含む 10 cm の花崗岩体の開口幅を測定した結果を図 3.1.2-8 に示す。接触式 3 次元測定結果と研削による測定結果は、良く一致した結果が得られていることが分かるが、X 線 CT 測定結果は、データのノイズや比較的粗い測定精度の影響を受けていると考えられ、現時点ではほかの 2 種類の測定手法と比較すると、高精度の開口幅の分布測定には不向きであることが分かる。ただし、X 線 CT 測定手法は、非破壊で開口幅を測定でき、試験体内に複数の亀裂がある場合も計測可能であるなどの長所があり、今後の測定データの精度向上を目指した研究が望まれる。また、得られた開口幅データは、(iii)で述べる開口幅の不均質な分布が亀裂内の地下水流動や物質移行に与える影響を検討するための数値解析へ適用する。

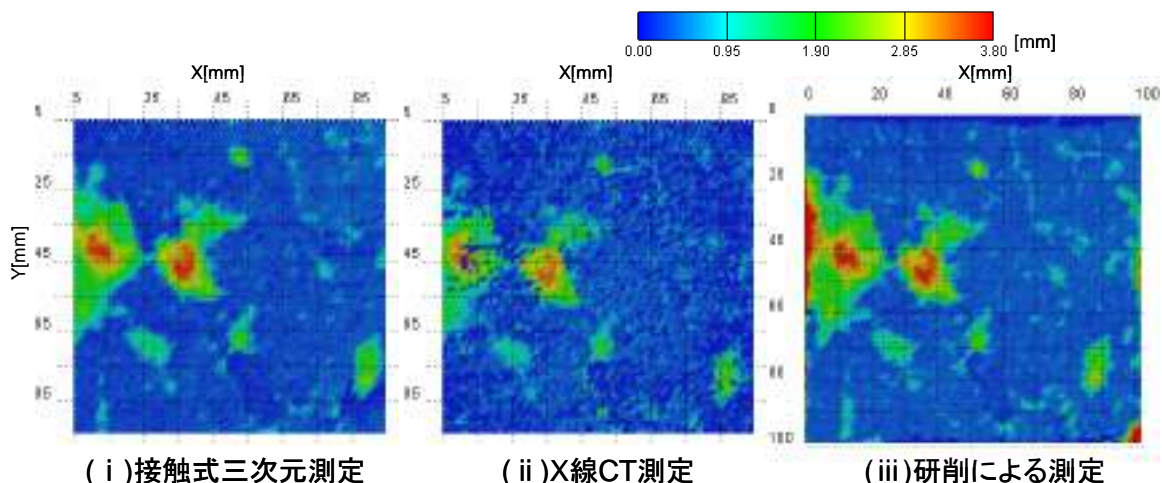


図 3.1.2-8 3種類の開口幅測定手法による開口幅測定結果の比較

(iii) 格子ガスオートマトン法（LGA法）を用いた数値解析

不均質に分布する亀裂開口幅が、亀裂内の地下水流動や物質移行特性に与える影響について検討することを目的として、微細かつ複雑な亀裂表面形状を比較的容易に扱うことが可能な解析手法である格子ガスオートマトン法（LGA法）を適用した流体・物質移行解析コードを開発した（吉野ほか，2003；武部ほか，2004）。図 3.1.2-9 に LGA 法の基本概念図を示す。LGA 法は、移動・衝突・散乱といった格子上的比較的簡単なローカルルールからマクロ的に複雑な現象を再現する手法であり、流体粒子間で質量と運動量を保存する衝突を繰り返させることにより Navier-Stokes の支配方程式を解いた場合と同等な流れが再現できる。また物質移行現象についても同様の方法で再現することが可能である。

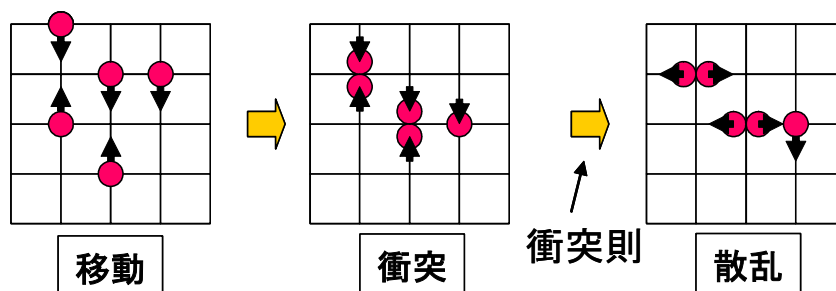


図 3.1.2-9 LGA 法の基本概念図

開発した LGA 法による解析コードを用いて、平行平板によるハーゲンポアズイユ流れの再現性確認を行った。2次元ポアズイユ流れで、入口から十分離れた領域の平均流速の x 方向成分の理論値は次式で与えられる。

$$u(z) = \frac{g}{2\nu} \left(\frac{\Delta H}{\Delta x} \right) B^2 \left(1 - \frac{z}{B} \right) \frac{z}{B} \tag{3.1.2-1}$$

ここで、

ν : 粘性係数 [m² s]

g : 重力加速度 [m s⁻²]

$u(z)$: z 位置における x 方向流体速度 [m s⁻¹]

B : 開口幅 [m]

$\Delta H/\Delta x$: 動水勾配 [$m\ m^{-1}$]

まず、ハーゲンポアズイユ流れを再現するのに最適な開口幅方向のメッシュ数について、平行平板モデルを用いて検討した。図 3.1.2-10 に解析に用いた平行平板モデルの概要図を示す。また、開口幅一定時にメッシュの大きさを変更したケースの解析結果と理論値との比較結果を図 3.1.2-11 に示す。図 3.1.2-11 は、開口幅方向の流速分布の解析結果と理論値の曲線形状を比較するため、流速の極大値で正規化している。開口幅を 5 メッシュで表現したケースでは、解析値が開口幅方向に山型となって、ハーゲンポアズイユ流れの特徴である放物線により表現できていない。しかし、開口幅を表現するメッシュ数を増加させると、解析値の形状は理論値の形状に近づき、ハーゲンポアズイユ流れの特徴である放物線に近い形状を示すようになる。8, 10, および 12 メッシュのケースではほとんど差が見られなくなり、理論値と同様の流速分布形状になることが分かる。このことから、解析を実施するにあたり、開口幅方向にある程度の数のメッシュが必要であることが分かった。平行平板モデルを使用した本解析では 8 メッシュ以上が必要である。解析モデルによって必要なメッシュ数は変化するが、平行平板モデルによる解析結果が必要メッシュ数の基準となると考えられる。

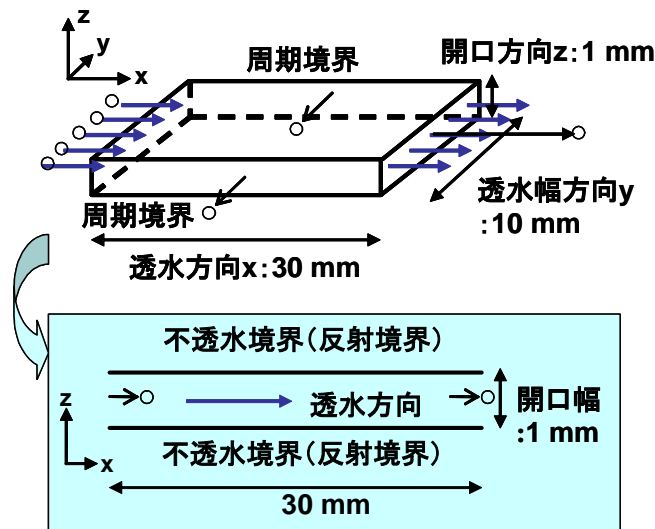


図 3.1.2-10 平行平板モデル解析ケースの概要図

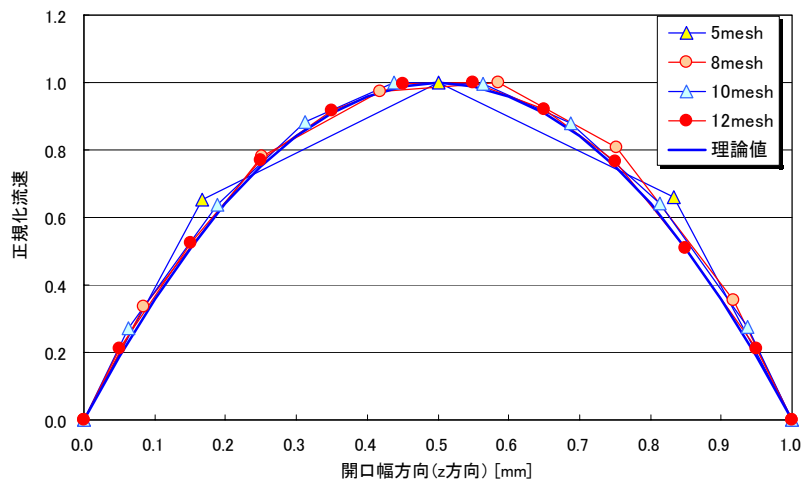


図 3.1.2-11 平行平板中の流速分布形状の比較
(ハーゲンポアズイユ流れの理論値と LGA 法による解析結果の比較)

実際の亀裂の開口幅分布を考慮した検討事例として、(ii)の亀裂開口幅測定技術で得た開口幅データを用いて流体・物質移行解析を実施した。研削による亀裂開口幅測定手法で測定した開口幅データ、およびその開口幅データを使用して作成した開口幅モデルとの比較を図 3.1.2-12 に示す。モデル作成にあたっては、研削により取得した開口幅データを座標化し、ノード間隔を 0.1 mm としてモデル化している。このモデルを使用し、LGA 解析を行った結果を図 3.1.2-13 に示す。この図では、岩体内の水頭分布、および流速ベクトル図を解析結果例として示している。岩体内の比較的開口幅の大きなところを流体が通過していることが表現できている。

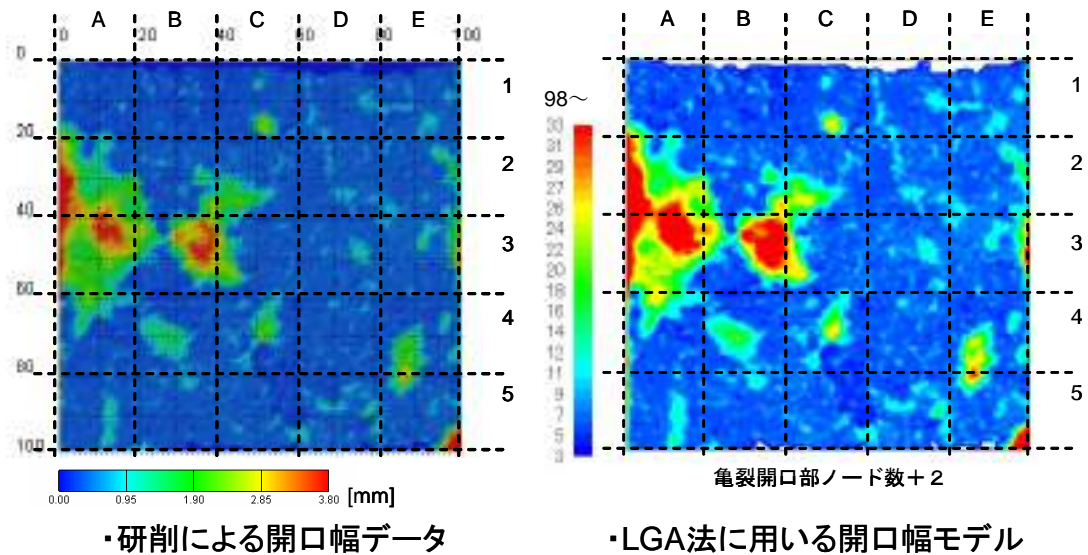


図 3.1.2-12 研削による開口幅データと LGA 法に用いる開口幅モデルの比較

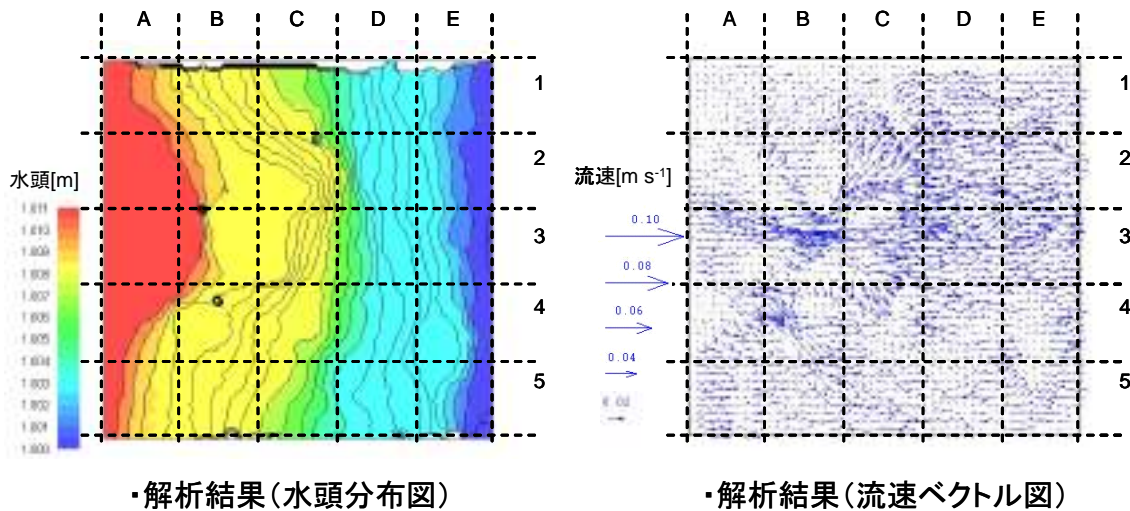


図 3.1.2-13 LGA 法による解析結果

(3) 結論

亀裂中の地下水流動と物質移行を表すモデルのひとつである 1 次元平行平板モデルやそのパラメータ値設定方法の信頼性向上に資することを目的として、亀裂内間隙構造の不均質性が亀裂中の地下水流動や物質移行に与える影響などの現象理解に必要な基盤技術の整備を行った。具体的には、①透水・トレーサー試験方法の改良、②亀裂開口幅評価技術に関する検討、③LGA 法による流体・物質移行解析コードの開発を実施した。トレーサー試験方法の改

良により、より精度の高い透水・トレーサー試験を実施できる見通しが得られた。亀裂開口幅評価技術に関しては、3種類の開口幅測定手法を検討し、それぞれに一長一短はあるものの、研削による開口幅測定手法により、高精度のデータ取得が望めることが分かった。LGA法を用いた数値解析では、LGA解析コードを作成し、平行平板モデルにおける理論値との比較による検証を行うとともに、研削による開口幅測定データを用いた解析を実施できる見通しが得られた。

(4) 今後の課題

これまでに整備した手法などを活用して、透水・トレーサー試験や開口幅測定などの実験的データを蓄積する。また、LGA法による解析コードについては、精度向上や計算時間短縮に向けてコードの改良などを実施し、解析結果を透水・トレーサー試験結果と比較し、開口幅の不均質性が亀裂内の地下水流動や物質移行に与える影響について詳細に検討する。これらの検討に際しては、複数の特徴的な亀裂内開口幅分布を示す亀裂試料を用いることで、透水量係数と物質移行に寄与する開口幅の関係などを、より一般的な関係式として提示することが可能と考えられる。

3.1.2.3 亀裂内充填物質や透水量係数などの不均質性が水理・物質移行に及ぼす影響の検討

(1) はじめに

亀裂内の不均質性には、不均質に分布する開口幅に加え、亀裂内充填物質や、さらには亀裂内に存在する複数のより小さな亀裂（以下、「サブ亀裂」という（図 3.1.2-23 参照））などが存在し、亀裂に接する基質部についても亀裂表面のフィルム状鉱物や変質部、健岩部が存在する。水理・物質移行の評価においては、これら亀裂内部の構造に関する概念モデルの設定が結果に大きく影響を及ぼす。

以上の観点から、本研究課題においては、亀裂内充填物質が物質移行に与える影響を把握することを目的に、拡散試験の可視化を実施する（Altman et al., 2001）とともに、亀裂内の透水量係数の不均質性や澱み域が物質移行に与える影響を把握するための数値実験を行い（Tsang and Karasaki, 1999, 2000, 2001）、さらに亀裂の厚み方向の透水性および内部構造の不均質性の影響について、海外での地下研究施設において単一亀裂を対象に実施されたトレーサー試験データを用いた検討を行った（Tsang and Karasaki, 2002）。また、上記で得られた知見に基づき、トレーサー試験データから安全評価で用いるパラメータを評価する際の亀裂内の充填物質や透水量係数の不均質性の解釈や取扱いが安全評価に与える影響について、トレーサー試験と安全評価における流速条件や時間スケールの違いに起因する支配的なプロセスの差に着目した検討を実施した。

(2) 研究内容

(i) 単一亀裂中の充填物質における拡散現象の検討

本研究では、亀裂内の充填物質や変質部を介した岩石基質部への拡散現象が、亀裂性岩盤中での移行遅延に与える効果を理解するために、釜石鉱山において採取した岩体を使用して室内試験を実施し、亀裂内の充填物質や変質部の拡散係数を取得した。図 3.1.2-14 に実施した拡散試験の流れを示す。亀裂性岩盤の脆弱な部分を対象として拡散試験を行うことから、擾乱ができるだけ小さくなるように細心の注意を払って切断・整形した。拡散試験の可視化には X 線吸収法を用い、拡散による岩体内のトレーサー質量の時間変化を解析することで各部分の拡散係数を評価した。また、亀裂を有する 2 種類の花崗閃緑岩試料（以下、「KB1」、「KC1」という）を切断・整形することにより、4 種類の試料（以下、「KB1am-1」、「KC1c-FF」、「KC1a-alt」、「KC1a-unalt」という）を作成した（図 3.1.2-15 参照）。

KB1am-1 の亀裂には、粉碎された東沸石脈と緑泥石からなるガウジと東沸石脈のレンズ状の破片が含まれている。KC1c-FF には、緑れん石脈とぶどう石脈が亀裂を充填しており、全体として固結している。KC1a-alt は脈を除去し変質部を残した試料、KC1a-unalt は脈と変質部ともに除去した試料である。

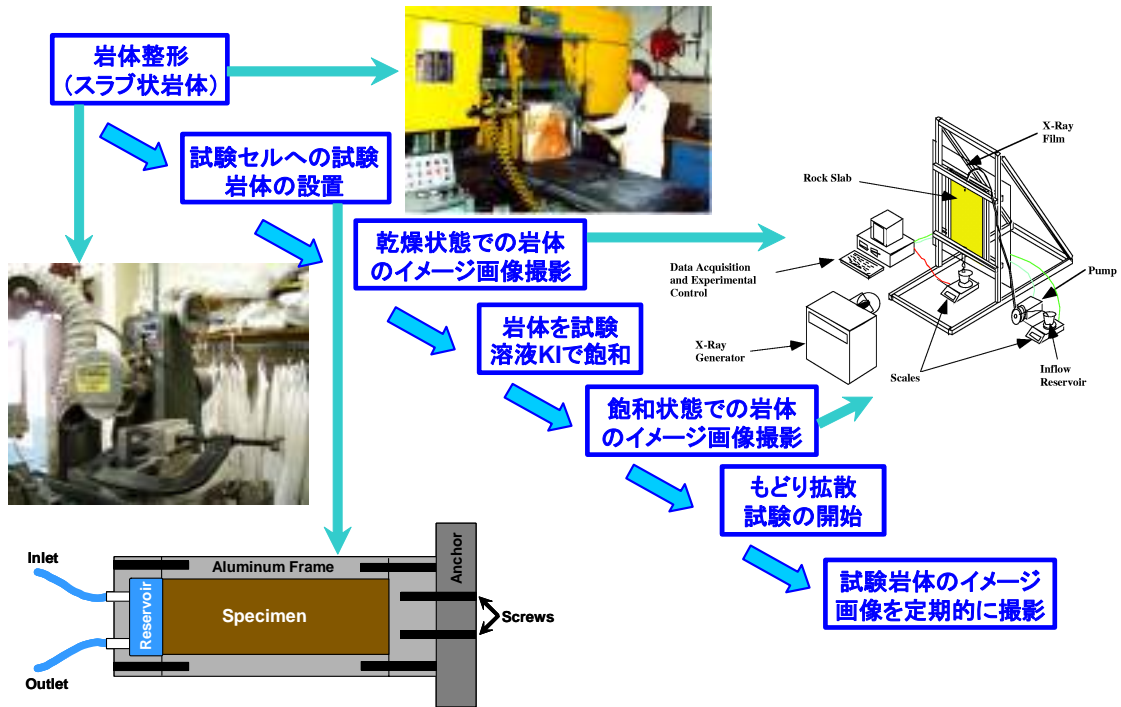


図 3.1.2-14 拡散試験の流れ

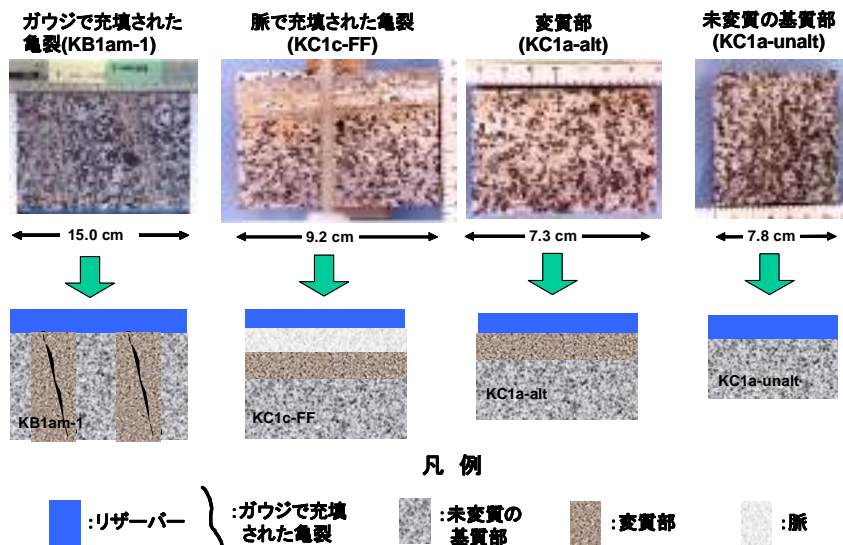


図 3.1.2-15 拡散試験に用いた試験岩体のサンプル

図 3.1.2-16 に、ガウジで充填されている亀裂中の間隙率分布と試験対象領域における濃度分布の時間変化を示す（試料名 KB1am-1：図 3.1.2-15 参照）。図 3.1.2-16 より、ガウジで充填されている亀裂の場合、左右の亀裂とも間隙率が 10～20%程度の亀裂中のガウジ部を中心にトレーサー（ヨウ化カリウム）が入り込んでいることが分かる。

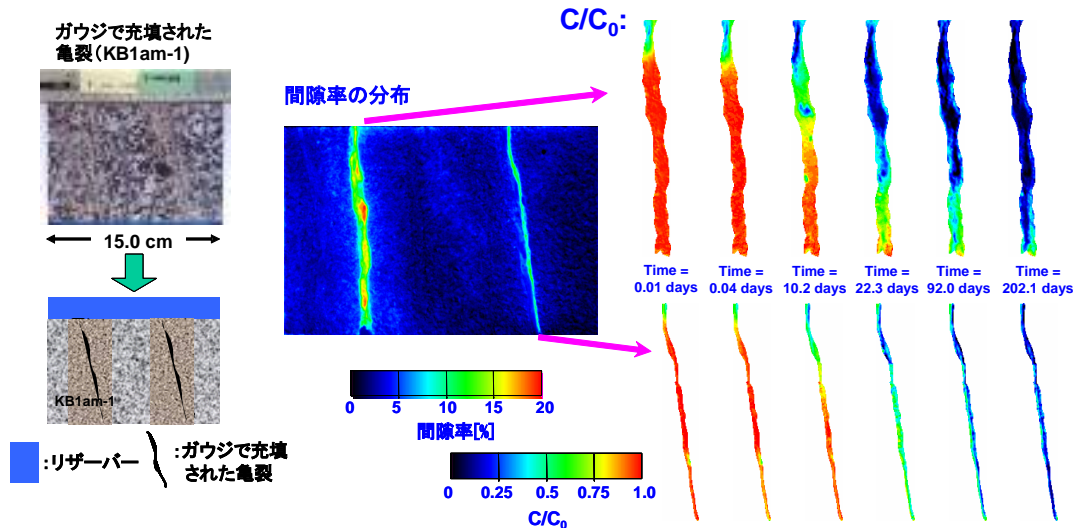


図 3.1.2-16 ガウジで充填されている亀裂中の間隙率分布と濃度分布の時間変化 (試料名 : KB1am-1)

試料中に残存しているトレーサー質量の時間変化を拡散モデルとフィッティングさせることにより、ガウジで充填されている亀裂、亀裂中の脈部および亀裂に沿った変質部における間隙水中の拡散係数を算出した。間隙水中の拡散係数の算出にあたっては、Crank (1975) によって導出された 1 次元の解析解、また Haggerty and Gorelick (1998) や Fleming (1999) によって提唱されている single-rate および multi-rate 拡散モデルを用いた数値解による 3 種類の方法を用いた。図 3.1.2-17 には、亀裂およびその周辺の各部について算出された間隙水中の拡散係数を示す。この図から分かるように、算出された間隙水中の拡散係数は、ガウジで充填された亀裂、脈部、変質部の順で小さくなるのが分かる。また図中には、Sato et al. (1997) が拡散試験により取得した釜石鉱山の亀裂脈部および変質部の間隙水中の拡散係数も併せて示している。Sato et al. (1997) の値は、本研究で得られた間隙水中の拡散係数値に比べ大きい値となっているが、これは Sato et al. (1997) の試料の方が小さくかつ薄いため、整形時により大きな擾乱を受けた可能性があると考えられる。

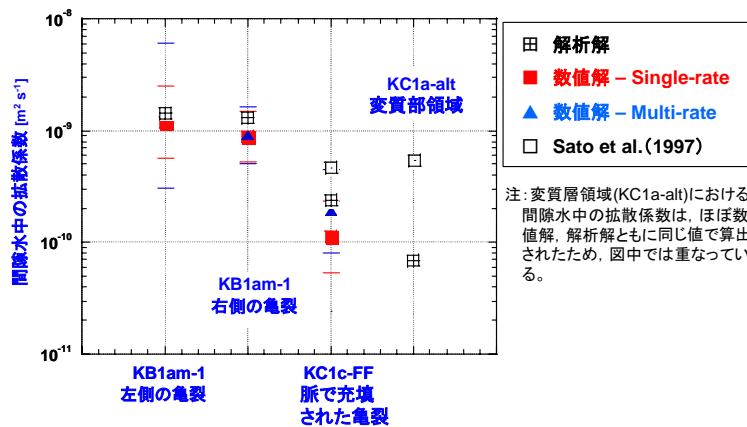


図 3.1.2-17 亀裂性岩盤中の各領域における間隙水中の拡散係数

これらの結果から、ガウジで充填された亀裂 (KB1am-1) 中の拡散係数が最も大きく、図 3.1.2-18 の中の C のモデルに示すように拡散係数の大きな充填物質を介して基質部へ移行する可能性があるものと考えられる。このことは、図 3.1.2-18 の中の A のモデルに示すような亀裂中の水みちと接している基質部のみへのマトリクス拡散を想定するこれまでの核種移行評価モデルの保守的な仮定を改善し、バリア性能の向上が期待できる可能性を示している。

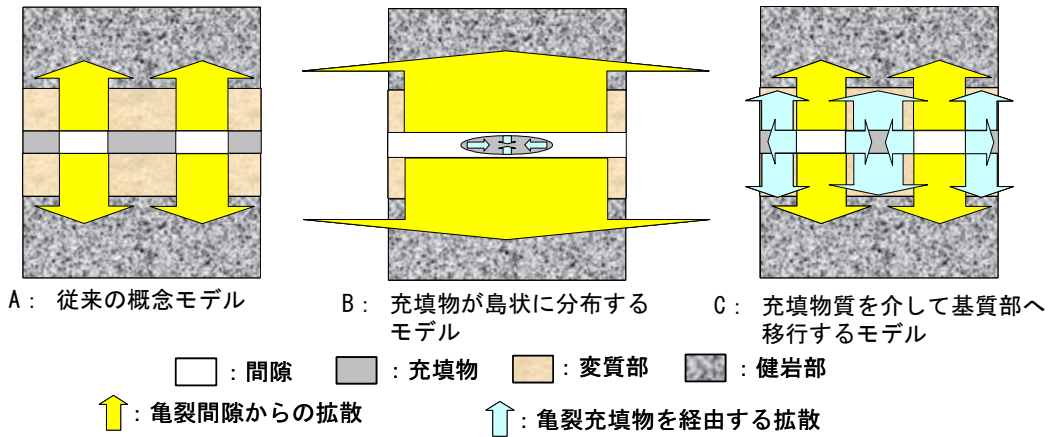


図 3.1.2-18 従来の亀裂内部構造の概念モデルと代替モデル

(ii) 亀裂平面内の不均質性が単一亀裂中の水理・物質移行に与える影響の検討

亀裂開口幅分布やそれに起因して不均質に分布する透水性，また亀裂間のかみ合わせが亀裂内の物質移行現象に与える影響を評価するために，図 3.1.2-19 に示す亀裂平面内の透水量係数の不均質性を表現した有限要素法による 3 種類の数値モデル(ケース①～③)を設定し，数値解析を実施した。ケース②，③においては，不完全にかみ合わさった亀裂交差部の幅は亀裂そのものの幅より短くなるため，亀裂が交差しない部分を，図中の亀裂境界部の両端に不透水部(図中の黒太線)で表現した。モデルの全体長さは 15.25 m，幅は 5.00 m で，境界条件は左側境界 5 m，右側境界 0 m の水頭値を与え，上下の側方境界は不透水とした。各解析ケースの設定条件を以下に示す。

- ① 3 種類の亀裂を設定し，透水性(固有透過係数)はそれぞれの亀裂において均質(左側の亀裂から， $2.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ ， $1.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ ， $0.5 \times 10^{-13} \text{ m}^2$)。亀裂間には不透水部を考慮しない。
- ② ①のケースで亀裂境界部に不透水部を考慮する。
- ③ ランダムに不均質場を与え，さらに亀裂境界部に②のケースと同様に不透水部を考慮する。各亀裂内の不均質性は対数正規分布を仮定し，平均値は①と同様，標準偏差 0.8748，相関長 0.5 m を与えた。

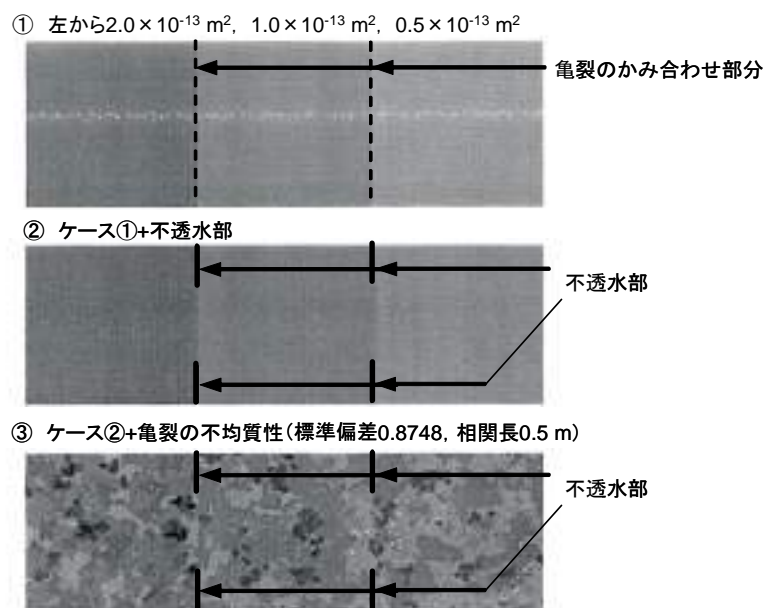
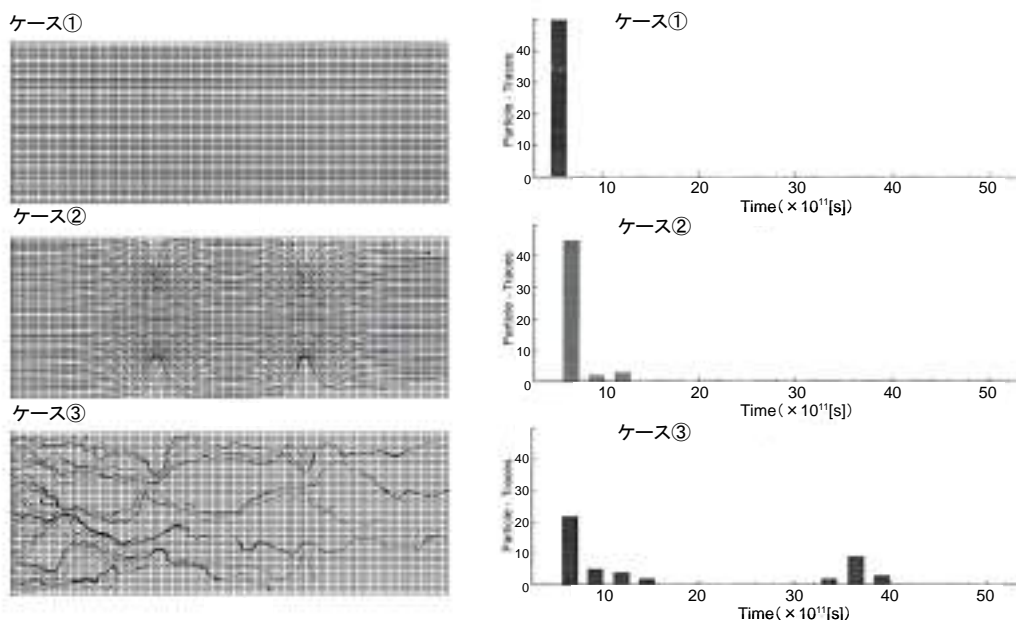


図 3.1.2-19 亀裂の透水性(固有透過係数)を変化させた解析ケース(ケース①～③)

上記のケース①～③において、浸透流解析を実施して流速場を求め、得られた流速場を用いて粒子追跡法により移行経路を求めた。6.0×10¹¹秒後の粒子の移行経路の結果を図3.1.2-20(i)に示す。ケース①では、亀裂交差部に不透水部を考慮していないので、粒子は左側から右側（流出境界）に直線的に移動し、亀裂間の透水性の違いの影響は見られない。ケース②では、亀裂交差部に不透水部を考慮していることから、粒子はこの部分を迂回して移動している。また、対称的な移行経路を形成している。ケース③では、透水性が不均質であるため、移行経路は複雑な形状を示している。



(i) 粒子追跡法による移行経路(6.0×10¹¹秒後) (ii) 流出境界での流出粒子時間変化

図 3.1.2-20 亀裂の透水性（固有透過係数）を変化させた場合の解析結果（ケース①～③）

図 3.1.2-20(ii)は、流出境界に到達した粒子数を時間の経過にしたがってプロットしたヒストグラムである。この図から分かるように、到達時間はケース①が一番短く、しかも流出粒子数は 3 ケース中最大値をもつ。一方、不均質性を考慮したケース③では、流出境界に早く到達している粒子とそうでない粒子の差が非常に大きく 2ヶ所にピークが現われており、ピーク時の流出粒子数はケース①と②に比べて非常に小さい。これは、初期に多数存在した移行経路が流出境界に向かううちにいくつかの移行経路に収斂し、粒子流出時間としてはふたつのピーク値に収束したこと、および不均質性のために巨視的分散効果が現れたことを意味している。

亀裂表面からの岩石基質部へのマトリクス拡散は、亀裂性岩盤の安全評価における重要な核種移行プロセスであるが、ケース①と②のように、単一亀裂内において均質性を仮定するとほぼ全領域が流れに寄与するため、その領域に接する亀裂表面からマトリクス拡散が生じる。一方、ケース③のように不均質性を考慮すると、図 3.1.2-20 から分かるように、亀裂中には流れに寄与する領域（チャンネル）と寄与しない領域が出現する。この場合、チャンネル部では、亀裂表面から直接マトリクス拡散するが、流れに寄与しない領域については、チャンネル部から流れに寄与しない領域へ拡散により物質が移行し、その後マトリクス拡散するものと考えられる。また、チャンネル部においても流量がチャンネル間で異なるため、マトリクス拡散の指標となる亀裂表面積と流量の比が局所的に異なることになる。したがって、流れに寄与しないと考えられる領域、すなわち、亀裂内充填物質（3.1.2.3(2)(i)項参照）や澱み域などへの拡散現象が亀裂内の核種移行に与える影響を十分理解するとともに、局所的な亀裂表面積と流量の比の違いを考慮して既存の 1 次元平行平板モデルの信頼性評価や新たな

評価モデル構築へ反映させる必要があるものと考えられる。

上記のことから、単一亀裂内の流れに寄与しない部分として澱み域が存在する場合に、その大きさが亀裂内の移行現象にどのように影響を及ぼすかについて数値解析を行った。図 3.1.2-21 に、解析に使用した単一亀裂内のチャンネルに矩形の澱み域を考慮したモデルを示す。このモデルを用いて、矩形の澱み域の深さと幅をそれぞれ変化させて、流れの解析および粒子追跡法による物質移行解析を実施した。流れの解析では、それぞれのモデルにおける亀裂部の左側境界に 0.01 mm，右側境界に 0 mm の水頭を与えて水頭分布と流速を計算し、粒子追跡法による物質移行解析を行い右側境界（流出境界）における破過曲線を求めた。

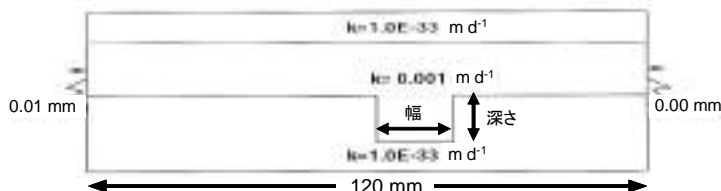


図 3.1.2-21 矩形の澱み域を考慮した解析モデル

図 3.1.2-22(i)(ii)は、澱み域の幅を 10 mm で固定し、深さを 5～40 mm まで変化させた場合、および澱み域の深さを 10 mm で固定し、幅を 5～20 mm まで変化させた場合の破過曲線である。澱み域の深さをパラメータとしたケース(d-1)～(d-3)の流出境界における破過曲線では、ピーク値、ピーク時間、形状は 3 ケース間ではほとんど変化していないが、深さを 5 mm 以下にした場合には影響が現れるものと考えられる。一方、澱み域の幅をパラメータとしたケース(w-1)～(w-3)の流出境界における破過曲線では、澱み域の幅が大きくなるにつれてピーク値は減少し、テールは長くなっている。以上の結果から、澱み域の幅は破過曲線に与える影響が大きいものに対して、澱み域の深さは一定値以上になると影響が小さくなることが推定される。このことは、亀裂の開口部すべてが一樣に移流に寄与するのではなく、奥行きが深い澱み域が存在する場合にはその部分では移流に支配された移行経路から外れるため、亀裂表面積と流量の比がチャンネル部と異なることを示唆している。

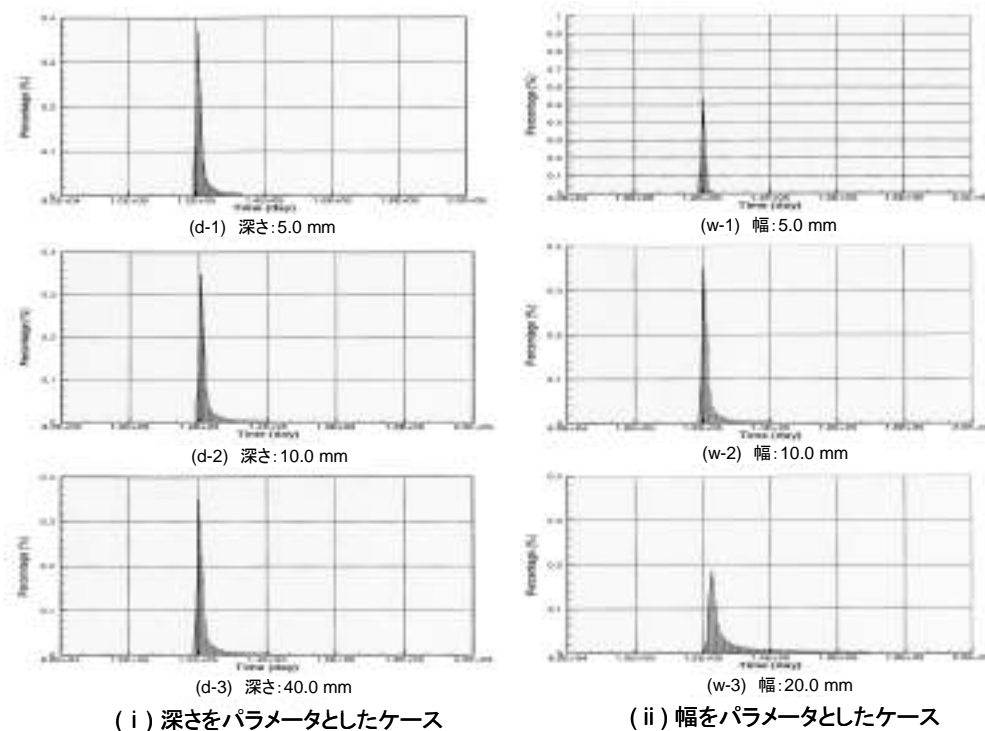


図 3.1.2-22 澱み域の深さと幅をパラメータとした時の破過曲線の解析結果

(iii) 亀裂の透水性および構造の厚み方向の不均質性が単一亀裂中の水理・物質移行に与える影響の検討

実際の亀裂や断層は、図 3.1.2-23 で示すように図中でサブ亀裂として示した亀裂が複数存在し、サブ亀裂の間のブロックにも小規模の亀裂が生じるなど複雑な構造を示す場合がある。このため、亀裂平面内の透水性の変化や亀裂平面の厚さ方向の地質構造を考慮してモデル化することにより、複雑な内部構造を有する単一亀裂中の地下水流動と物質移行を適切に表現する手法について検討した結果を述べる (Tsang and Karasaki, 2002)。対象としたトレーサー試験は、エスポ島地下研究施設の単一亀裂で実施された原位置トレーサー試験である。本試験では、放射性核種などをトレーサーとして用いているが、試験データは核種の崩壊の影響を補正しており、本データを用いた以下の検討においても、核種の崩壊の影響は考慮していない。

図 3.1.2-23 で示した Mazurek et al. (2001) により提案された複雑な内部構造をもつ亀裂の概念モデルに基づき、数学モデルの構築およびパラメータ値のキャリブレーションを実施した。モデル構築にあたり、まずサブ亀裂の内部は不均質な透水量係数分布を有する 2 次元平面で表現できると仮定した。また亀裂平面に垂直な方向については、はしご構造を仮定した。サブ亀裂周辺部分への拡散と収着については 3 種類の異なるサイズ (小：サブ亀裂中のガウジ、中：はしご構造亀裂内の基質ブロック、大：はしご構造亀裂外側部の半無限基質部) の基質ブロック中で生じると仮定した。亀裂中の地下水流れと物質移行解析の手順を以下に示す。

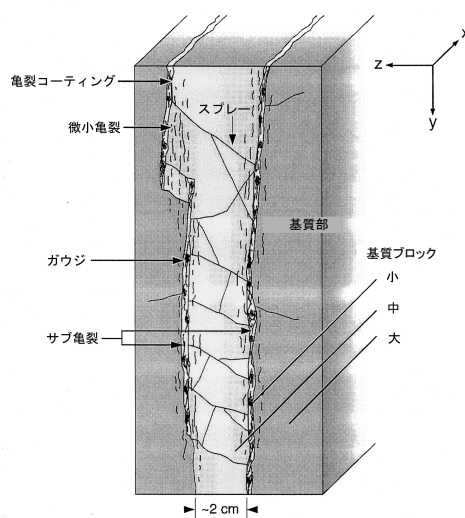


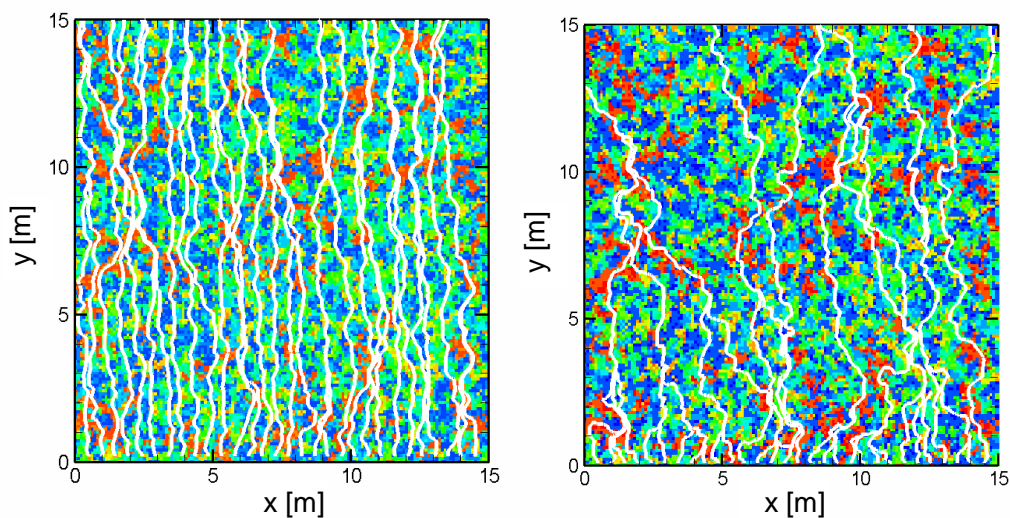
図 3.1.2-23 亀裂の内部構造の概念モデル (Mazurek et al. (2001) を編集)

- ① 亀裂面における透水量係数データに基づき、地球統計法による不均質場発生コード SISIM (Deutsch and Journel, 1998) を用いて不均質透水量係数場のリアライゼーションを発生させる。
- ② 発生させた透水量係数場を用いて流れ場を計算する。
- ③ 2 枚のサブ亀裂を考慮した場合の、サブ亀裂の流量比 α を仮定する。
- ④ 算出した流れ場に対して粒子追跡法コード THEMM (Tsang and Tsang, 2000) を適用し、各サブ亀裂内における粒子の移行時間を算出する。
- ⑤ 小、中、大の 3 種類のサイズの基質ブロックを仮定し、マトリクス拡散と収着に関するパラメータを実測データに基づき割り当てる。
- ⑥ ②⑤に基づき THEMM コードを用いた物質移行解析を行う。このとき、粒子追跡の各ステップにおいて、粒子は 3 種類のサイズの異なる基質ブロックに事前に設定した確

率で遭遇する。各ステップでは、3種類の基質ブロックへの拡散や収着により生じた時間遅れを計算することにより、事前に算出した移流のみによる移行時間(④)を修正する。

- ⑦ 時間の関数として個々の粒子の位置を亀裂内部で追跡し、各ステップにおいて亀裂出口に達した粒子を加え合わせることで破過曲線を算出する。

SKBのエスポ地下研究施設サイトに存在する亀裂を対象として一連の透水試験により取得された透水量係数データに基づき、不均質場発生コードを用いて不均質な透水量係数分布を発生させた。図3.1.2-24(i)(ii)は、それぞれ透水量係数の平均値を同じものとし、標準偏差を変化させた場合の透水量係数分布と流線(図中の白線)を示している。図3.1.2-24(i)の不均質透水量係数場は対数平均値-7.5、対数標準偏差0.58であるのに対し、図3.1.2-24(ii)の不均質性は対数平均値-7.5、対数標準偏差1.38である。相関長は、両ケースともに透水量係数が対数平均値-6.8以上の領域で1 m、以下の領域で0.3 mとした。モデル化領域の大きさは15 m×15 mの2次元領域であり、図3.1.2-24の下から上の方向に全体に一定の動水勾配が作用するように水頭値を与え、左右境界部を不透水とした。



(i)対数平均値：-7.5，対数標準偏差：0.58 (ii)対数平均値：-7.5，対数標準偏差：1.38

* 赤色は高透水性部，青色は低透水性部を示す。白線は流線を示す。

図 3.1.2-24 発生させた透水量係数分布と流線

トレーサー試験結果を用いたパラメータ値のキャリブレーションでは、図3.1.2-24(i)に示される不均質場を初期のモデルとした。また、拡散と収着は、小(サブ亀裂中のガウジ)、中(はしご構造亀裂内の基質ブロック)、大(はしご構造亀裂外側部の半無限基質部)の3種類の異なるサイズの基質ブロック中で生じることを想定し、それぞれの構成割合は小10%、中30%、大60%とした。表3.1.2-1に原位置トレーサー試験を対象としたキャリブレーションにおけるパラメータの初期値とキャリブレーション後のパラメータ値を示す。以下にキャリブレーションの内容と結果を示す。

トレーサー試験が実施された亀裂には5本のボーリング孔が掘削されており、透水量係数が測定されている。これらの対数平均値は-7.45 ($T=3.50 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$)であるが、測定値をそのまま使用して解析を行うと測定値に比べて非常に大きな地下水位低下を生じる。これは、実際には亀裂が他の亀裂と連結していることに起因する可能性があるが、データがないことから、亀裂の透水量係数に対してキャリブレーションを実施し、透水量係数の平均値を10倍 ($T=3.50 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$)に、対数標準偏差を1.38に設定した。このため、対数平均値-6.45、対数標準偏差1.38を有する不均質透水量係数場を以降で実施するトレーサー試験の解析に使

用することとした。表 3.1.2-1 の亀裂中の間隙率とは複雑な亀裂中の間隙の割合のことである。水理地質構造モデルのキャリブレーションに対して良好な値を与える透水量係数 T の平均値 $3.50 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ を三乗則に代入することにより代表的亀裂開口幅を求め、亀裂の幅で割り戻すことにより亀裂中の間隙率 0.011 を求めた。3 種類のマトリクスブロックの構成割合に関しては、中ブロックの割合を 30 % で固定し、小ブロックの割合を変化させた。大ブロックの割合は小ブロックの割合に依存して変化する。亀裂のガウジをモデル化した小ブロックが 25 % のときに HTO 破過曲線の観測値に最も近づくため、それぞれの構成割合を小 25 %、中 30 %、大 45 % とした。サブ亀裂内の流量比 α を 0 から 1 まで変化させ、HTO 破過曲線の観測値と比較した。流量比 α が増加するにつれてピークの到着が遅れ、ピーク値は若干減少するとともに、破過曲線のテール部にもう 1 箇所のピーク（肩状の場合もある）が出現することが分かった。 $\alpha=0.03$ のとき観測値と計算値は最も良好な一致を示した。収着性トレーサーとしては、Sr-85、Co-58、Tc-99m、Am-241 がトレーサー試験に使用されている。Tc-99m と Am-241 については試験の時間範囲内において破過曲線は観測されなかった。そのため、キャリブレーションは破過曲線が観測された Sr-85 と Co-58 に対して実施した。その結果、Sr-85 については良好に一致する分配係数値が推定できた。一方、Co-58 についてはピークの出現時間に一致する Kd 値を推定することができたが、全体的に良好な一致を与える Kd 値を推定することはできなかった。なお、Tc-99m と Am-241 については、Co-58 のピークの出現時間に一致する Kd の推定値と初期値の比を用いてそれぞれの核種の Kd 値に換算することにより、予測解析のみを行った。

表 3.1.2-1 キャリブレーション前後のパラメータ値

パラメータ	初期値	キャリブレーション に使用したデータ	キャリブレーション 後の値	
透水系数 T の平均値 [$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$]	3.50×10^{-8}	地下水位低下量	3.50×10^{-7}	
透水系数 T [$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$] の標準偏差 の対数值	0.58	HTO 破過曲線	1.38	
亀裂中の間隙率 [-]	0.0017	HTO 破過曲線	0.011	
マトリクス拡散ブロックの 構成割合 (小[%]/中[%]/大[%])	10/30/60	HTO 破過曲線	25/30/45	
サブ亀裂内の流量比 α [-]	0.01	HTO 破過曲線	0.03	
マトリクスブロック における Kd 値 [$\text{m}^3 \text{ kg}^{-1}$]	Sr-85	4.70×10^{-6}	Sr 破過曲線	1.50×10^{-4}
	Co-58	8.00×10^{-4}	Co 破過曲線	4.00×10^{-3}
	Tc-99m	0.2	未検出	1.0
	Am-241	0.5	未検出	2.5

図 3.1.2-25 は、非収着性トレーサー HTO と I-131、収着性トレーサー Sr-85 と Co-58 の観測値とキャリブレーション後の解析結果を示している。また、収着性トレーサー Tc-99m と Am-241 の予測解析の結果を合わせて示している。図 3.1.2-25 に示される結果から分かるように、非収着性トレーサー HTO と I-131、および収着性が小さいトレーサー Sr-85 については観測値と計算値は良好な一致を示しておりキャリブレーションは成功していることが分かる。しかしながら、Sr-85 よりも強い収着性を有する Co-58 についてはピークの到達時間までは合わせることはできるが、ピーク位置、破過曲線の立ち上がり部およびテール部を全体

的に一致させることは困難であり、キャリブレーションは成功しなかった。このことから、Co-58 の場合には、線形・瞬時・可逆を仮定した収着モデルが成立せず、非線形的あるいは不可逆的な収着現象やコロイドの影響などの他の現象を考慮する必要性が示唆された。

今回検討した 2 枚のサブ亀裂を有する亀裂においては、1 枚の亀裂しか考慮しない通常の場合概念モデルに比べてマトリクス拡散寄与面積が増大することになるが、安全評価で対象とする数千～数万年のオーダーではサブ亀裂の間のブロックが核種で飽和するために実際のマトリクス拡散の効果は 2 倍にならない可能性がある。この点については今後検討する必要がある。

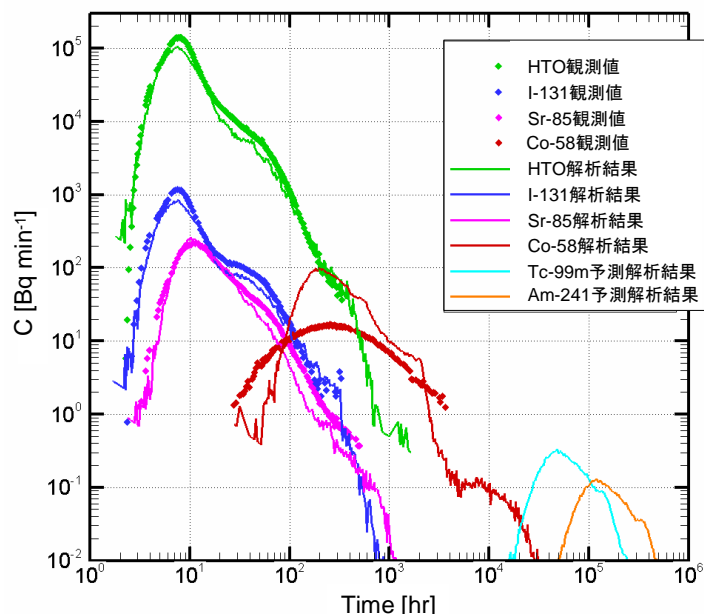


図 3.1.2-25 トレーサー試験結果とキャリブレーション後の解析結果

(iv) 不均質性がトレーサー試験の解釈に与える影響の検討

亀裂中のガウジや脈などの充填物質の影響を考慮したモデルが、原位置で実施されるトレーサー試験の解釈が安全評価結果に与える影響を検討することを目的に、SKB（スウェーデン）が主催し、サイクル機構も参加している地下水流動・物質移行モデリングタスクフォースを活用した検討を実施した。本モデリングタスクフォースは、エスポ島地下研究施設で実施された水理試験やトレーサー試験のデータの評価を行うもので、サイクル機構から新たな課題として、原位置で実施されたトレーサー試験などのサイト特性調査データを直接的に用いて安全評価の流速条件と時間スケールでの物質移行挙動を評価・検討することを提案し、タスク 6（PASC プロジェクト）として採択されたものである。このタスクは、トレーサー試験を説明可能な短期・長期両方のプロセスを考慮した複数の現実的モデルを構築し、それらのモデルを用いて安全評価の流速条件（動水勾配 0.1 %）および時間スケール（ 10^6 年）での物質移行の挙動を比較することにより、安全評価に大きな影響をもたらすプロセスとそれに必要なパラメータおよびそれらと原位置試験の関係を検討するものである。ここでは、単一亀裂を対象としたタスク 6A、6B および 6B2 について報告する。

タスク 6A は、トレーサー試験を説明可能なモデルおよびパラメータを検討するものであり、TRUE-1 試験（単一亀裂におけるトレーサー保持機能理解試験）の一環として、Feature A（図 3.1.2-26 参照）と呼ばれる亀裂において行われた 5 m 規模のトレーサー試験（STT-1b : Winberg et al., 2002）を対象に、水理地質構造モデル化（Elert and Svensson, 2001; Mazurek and Jacob, 2001）の結果を活用して実施された。移行遅延効果の概念モデルとしては、亀裂の移流間隙から岩石基質部への拡散という従来のマトリクス拡散に加え、SKB のコア観察に

に基づき充填物質が亀裂間隙内に島状に分布するとの結果が得られていることから、亀裂の移流間隙から亀裂内充填物への拡散（図 3.1.2-18 中のモデル B 参照）を考慮している。なお、わが国では、亀裂にグラウトを注入後、亀裂の切りはがしを行った結果から、図 3.1.2-18 中のモデル C に示すような亀裂間隙に充填物質が存在する例が報告されている（新見ほか、1992）。

また、キャリブレーションにあたっては、非吸着性および吸着性トレーサーの 2 段階に分けて行い、STT-1b トレーサー試験においては、非吸着性トレーサーとして HTO と I-131、吸着性トレーサーとして Sr-85 と Co-58 を用いた。非吸着性トレーサーのキャリブレーションにおいては、開口幅、移流速度、分散長、充填物質の拡散深さ、充填物質の間隙率、変質部の拡散深さ、変質部の間隙率、健岩部の拡散深さ、健岩部の間隙率の範囲を一様分布で定義し、パラメータの組合せをモンテカルロ法により 400 個のリアライゼーションを作成し、トレーサー破過曲線が実測値に最も近いものを抽出した。吸着性トレーサーのキャリブレーションにおいては、非吸着性トレーサーに対するキャリブレーション結果に加え、Sr-85 を用いた Kd のキャリブレーションを行った。Sr-85 に対するキャリブレーション後の破過曲線を図 3.1.2-27 に示す。

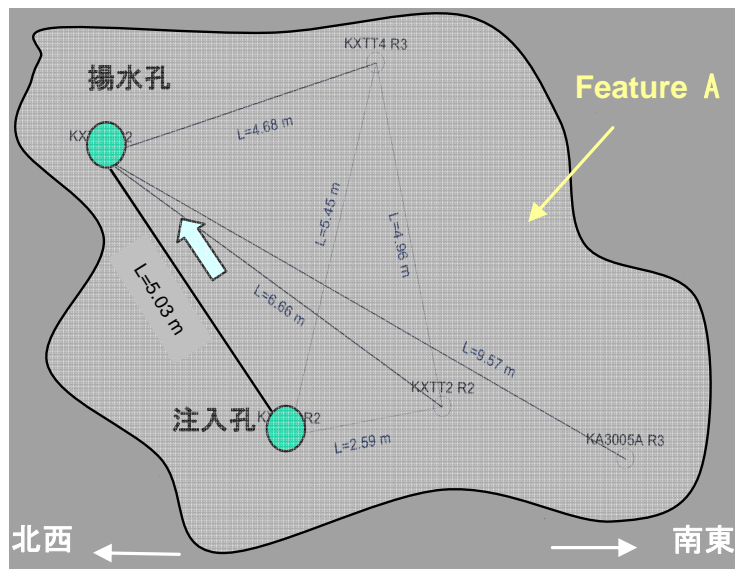
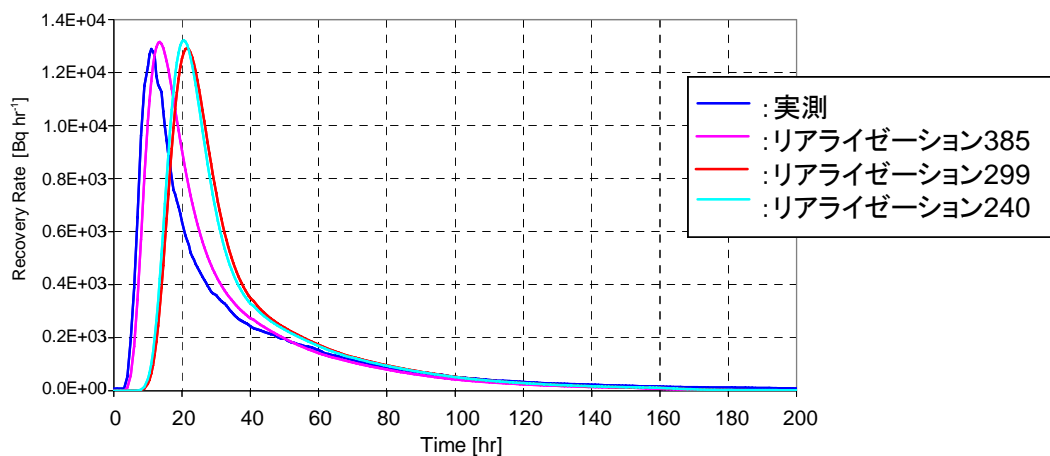


図 3.1.2-26 Feature A を貫通する STT-1b トレーサー試験のボーリング孔配置



*リアライゼーションの番号は400個発生させた際のID番号

図 3.1.2-27 タスク 6A の解析結果例（Sr-85 に対するキャリブレーション後の破過曲線）

タスク 6B では、タスク 6A で抽出したトレーサー試験を再現できた複数のリアライゼーションを用いて、安全評価の流速条件（動水勾配 0.1 %）および時間スケール(10⁶ 年)での物質移行の挙動を比較した。Am-241 の例を図 3.1.2-28 に示す。図に示すように、充填物質の間隙率を低くかつ健岩部の間隙率を高く見積もったリアライゼーション 240（図中水色の破過曲線）は、充填物質の間隙率を高くかつ健岩部の間隙率を低く見積もったリアライゼーション 385（図中ピンク色の破過曲線）より最大ピーク時間が遅い。前者のケースは、充填物質の遅延効果を小さく健岩部での効果を大きく見積もったリアライゼーションである。ここで、充填物質の影響をまったく考慮しない従来の安全評価で用いているモデルでトレーサー試験の解釈を行う場合には、トレーサー試験のような短い期間内で遅延上支配的となる亀裂充填物質による遅延効果を健岩部の特性として評価し健岩部の効果を大きく見積もることになってしまうため、その特性を安全評価にそのまま用いると非保守的な結果になることを示している。

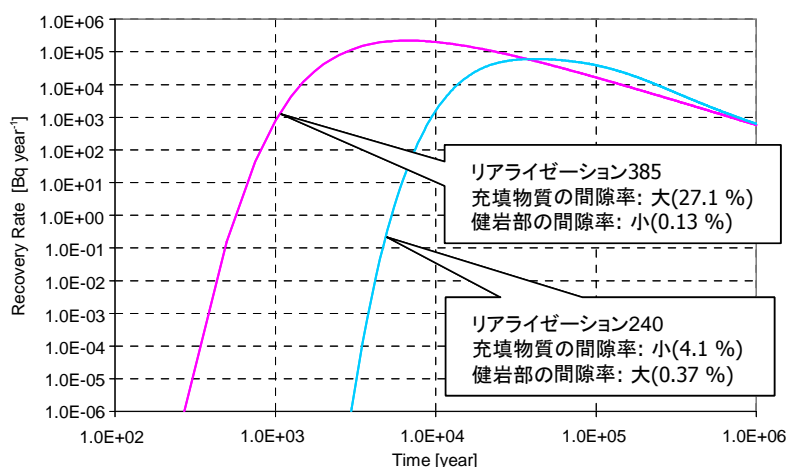


図 3.1.2-28 タスク 6B の解析結果例（トレーサー試験を再現できたケースを用いた、安全評価の流速条件、時間スケールでの Am-241 の移行挙動の推定）

タスク 6B2 では、単一亀裂中の透水量係数の不均質性（チャンネルリング）の影響を検討することを目的に、図 3.1.2-29 に示すように Feature A を横切る亀裂 X、亀裂 Y を設定し、トレーサー放出源として亀裂 X と亀裂 Y の間に処分孔を模擬した長さ 2 m の線放出源を仮定したうえで、安全評価の流速条件および時間スケールに対して下流側の亀裂 Y におけるトレーサーの放出率を評価した。このような境界条件の場合には、タスク 6B での揚水孔に向かった強制的な放射状の流れ場に比べて、亀裂 X と亀裂 Y の間のチャンネルに沿った流れが起きやすく、また線放出源を横切るチャンネルの影響も受けやすくなると考えられる。タスク 6B2 では、このような不均質性の影響を検討するために 4 種類の異なる透水量係数の不均質場を想定した（表 3.1.2-2 参照）。各不均質場について、STT-1b トレーサー試験を図 3.1.2-29 のレイアウトでモデル化し、HTO、I-131、Sr-85、Co-58 について物質移行開口幅と Kd のキャリブレーションを行った。キャリブレーションを行った後に、上記解析条件を適用して下流側の亀裂 Y におけるトレーサーの放出率を表す破過曲線を比較した。Am-241 の例を図 3.1.2-30 に示す。図に示されるように、不均質場の影響はピーク時間に数倍程度の差が生じる程度であり、上記のタスク 6B の結果が 1 オーダー程度の差があるのに比べて小さい。このことから、本タスクで着目した透水量係数の不均質性よりも、タスク 6B で着目したようなトレーサー試験に基づくキャリブレーションが、安全評価の条件下に適用した時のピーク時間の挙動のばらつきにより大きな影響を与えることが分かる。

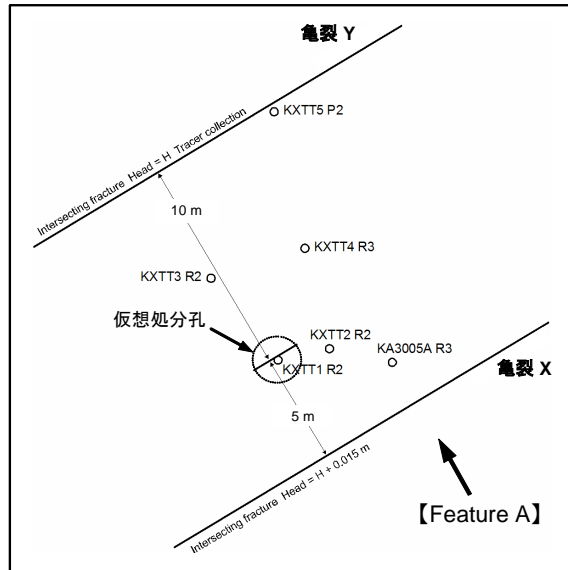


図 3.1.2-29 タスク 6B2 の境界条件

表 3.1.2-2 透水量係数の不均質場とパラメータ

case	透水量係数の不均質性の特徴	統計的相関モデル (バリオグラム)	パラメータ
1	幅の広いチャンネル	指数関数モデル	$T_{\text{mean}} : 1 \times 10^{-6}$ Cov : 2 $T_{\text{std}} : 5 \times 10^{-6}$ Dimension : 2
2	幅の狭いチャンネル	指数関数モデル	$T_{\text{mean}} : 1 \times 10^{-6}$ Cov : 1 $T_{\text{std}} : 5 \times 10^{-6}$ Dimension : 3
3	チャンネルなし : 幅広い不均質性	指数関数モデル	$T_{\text{mean}} : 1 \times 10^{-6}$ Cov : 1 $T_{\text{std}} : 1 \times 10^{-6}$ Dimension : 2
4	チャンネルなし : 幅狭い不均質性	Null モデル	$T_{\text{mean}} : 1 \times 10^{-6}$ $T_{\text{std}} : 1 \times 10^{-6}$

注 : ここで, T_{mean} : 平均透水量係数, T_{std} : 透水量係数の標準偏差, Cov : 共分散, Dimension : 次元である。

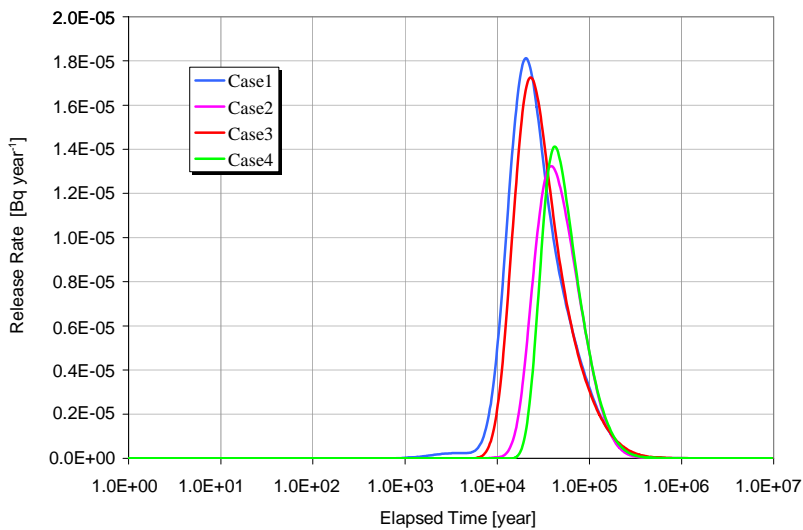


図 3.1.2-30 タスク 6B2 の解析結果例 (透水量係数の不均質場を考慮した時の安全評価の流速条件, 時間スケールでの Am-241 の移行挙動の推定)

(3) 結論

第2次取りまとめで課題となっていた亀裂内の充填物質や透水量係数などの不均質性が水理・物質移行に及ぼす影響について、以下の観点から検討を行った。

- ① 亀裂内充填物の影響
- ② 亀裂内の澱み域を含む透水量係数の不均質性
- ③ 亀裂内の厚み方向の不均質性
- ④ 亀裂内の不均質性がトレーサー試験の解釈に与える影響

①については、亀裂内充填物質を含む岩石試料を用いた拡散実験の可視化により、亀裂充填物質への拡散が亀裂周辺の基質部への拡散より速いことが観測された。このことは、亀裂充填物質への拡散を介した基質部のより広範な領域へのマトリクス拡散現象が起きる可能性を示唆しており、既存の安全評価モデルの保守的仮定では取り込まれていなかった遅延効果が期待できる可能性を示している。

②については、透水量係数の不均質性によりチャンネルが発生するため、流れに寄与する領域が減少するとともに、チャンネル間で流量が異なるために、マトリクス拡散の指標となる亀裂表面積と流量の比が局所的に異なる可能性がある。また、デッドエンドポアなどの澱み域が存在すると、開口していても移流が起きない領域が生じ、亀裂開口部内を拡散で移行した後基質部に拡散する可能性がある。

③については、実際の亀裂は単一の面だけでなく複数の亀裂面から構成されている場合があり、ここでは2枚のサブ亀裂からなる場合のモデル化を行った。この場合、1枚のサブ亀裂しか想定しない通常概念モデルよりもマトリクス拡散寄与面積が大きくなるが、長期においては2枚のサブ亀裂の間のブロックが飽和するため、安全評価に用いるマトリクス拡散寄与面積は2倍にならない可能性がある。

①～③の事項は、相互に関連しており、上記の事項を単独で評価することは誤った結論を導く可能性があるため、今後は①～③すべてを反映したうえで亀裂内の不均質性を総合的に考慮した場合の挙動を評価する必要がある。

一方、④については、トレーサー試験に基づき安全評価で用いるパラメータを評価する際には、トレーサー試験のような短い期間内で遅延上支配的となる亀裂内充填物質による遅延効果を適切に考慮した評価を行わないと、健岩部の遅延効果を過大評価する可能性がある。

(4) 今後の課題

単一亀裂の不均質性については、(3)で述べたように、亀裂内の不均質性を総合的に考慮した場合の挙動を評価する必要がある。特に、亀裂充填物質を介して基質部へ移行するとする概念モデルについて検討する必要がある。亀裂内の不均質性を総合的に考慮したモデルと第2次取りまとめで用いた1次元平行平板モデルを、同一のデータに基づいて構築し、その挙動を比較することにより信頼性を確認する。異なる挙動を示す場合においては、不均質性を考慮したモデルを用いて1次元平行平板モデルに等価なパラメータを提供する手順を検討する。

亀裂交差部を含む亀裂ネットワークスケールで考慮すべき要素については、亀裂ネットワークスケールで行われたトレーサー試験の解析を通じて今後引き続き検討を行う。

3.1.2.4 原位置トレーサー試験より得られる水理・物質移行特性値の不確実性評価

(1) はじめに

亀裂の内部構造は、不均質に分布する開口幅や亀裂内を部分的に充填しているガウジや脈などの亀裂内充填物質を有しているほか、変質した基質部も存在する場合があります。そこではより複雑な物質移行現象が生じていると考えられる。3.1.2.3 項では、亀裂内充填物質が物質移行に与える影響や、透水性の不均質性が地下水流動や物質移行に与える影響などについての数値解析的検討に加えて、海外の地下研究施設で実施されたトレーサー試験データの解釈に際して透水性の不均質性が亀裂内充填物質などが複合的に作用する影響を検討した。このように、地下研究施設などで実施された原位置試験データからパラメータ値を評価する際には、原位置試験データの不確実性や試験データを解釈する際に用いるモデルの自由度が増えることに起因した不確実性などに留意する必要がある。本研究では、原位置トレーサー試験の結果に基づき地下水流動特性や物質移行特性を求める手法と得られた特性値の不確実性を定量的に評価する方法について検討した。

具体的には、亀裂中の移流・分散、基質部への拡散を考慮した 1 次元平行平板モデルを用いて、原位置で実施されたトレーサー試験の結果の解釈を行う。その際、パラメータ値を同定するとともに、同定したパラメータ値の信頼区間を定量的に評価する（井尻ほか、2001；吉野・澤田、2002）。本手法を用いた事例検討として、スウェーデンのエスポ地下研究施設において実施されたトレーサー試験結果の評価（井尻ほか、2004）と、スイスのグリムゼルテストサイトで実施されたトレーサー試験結果の評価を実施した（畑ほか、2004）。

本項では、原位置トレーサー試験の結果に基づき地下水流動特性や物質移行特性を求める手法と得られた特性値の不確実性を定量的に評価する手法、およびその適用事例としてスウェーデンのエスポ地下研究施設において実施されたトレーサー試験結果の評価について述べる。

(2) 研究内容

原位置で実施されたトレーサー試験結果の解釈には、亀裂中の移流・分散、亀裂表面への収着、基質部への拡散、収着を考慮した 1 次元平行平板モデルを用いた。トレーサー試験の結果は、トレーサー観測孔におけるトレーサーの破過曲線（濃度観測値の時間変化）で示される。トレーサー注入量や、トレーサー注入孔および観測孔における注排水条件などの種々の条件に基づいて、1 次元平行平板モデルを用いて破過曲線を表現できるパラメータ値の組み合わせの検討を通じて、トレーサー試験結果の解釈を行う。本研究では、そのパラメータ値の組み合わせの検討に Carrera and Neuman (1986a, 1986b, 1986c) が示した最尤推定法を採用し、次式で示される目的関数 S を最小化するパラメータ値の組み合わせを求めることにした。

$$S = \frac{\{c^* - c\}^T V_c^{-1} \{c^* - c\}}{\sigma_c^2} \quad (3.1.2-2)$$

ここで、

- c^* : 試験から得られる破過曲線のトレーサー濃度の観測値
- c : モデルを用いた計算で得られる破過曲線のトレーサー濃度
- $\{c^* - c\}$: トレーサー濃度観測値とモデルを用いた計算で得られる濃度の残差
- V_c : トレーサー濃度観測値間の誤差の相対的割合を示す正值の対角行列
(観測値間で相関がない場合には単位行列となる)
- σ_c^2 : トレーサー濃度観測値の誤差の分散値

この目的関数を最小にするときのパラメータ最尤推定量をそれぞれのパラメータ同定値とする。そして、パラメータ同定値の分散からパラメータの信頼区間を算出する。図 3.1.2-31 に、パラメータ数 M が 2 の場合のパラメータ信頼区間の模式図を示す。横軸と縦軸はそれぞれパラメータ値を表している。同定値を中心とした楕円は α を有意水準とすると、 $(1-\alpha)$ [%] 信頼区間の限界線を表している。楕円が小さいほど同定値の信頼性は高くなる。また、パラメータ数を変えた複数のモデルについて、それらの適用性を相対的に検討するための基準として、赤池の情報量基準 AIC (赤池, 1976) を用いた。AIC はパラメータが同定された際の目的関数 S とパラメータの数の 2 倍との和で表され、この値が最も小さいモデルを最適モデルとした。

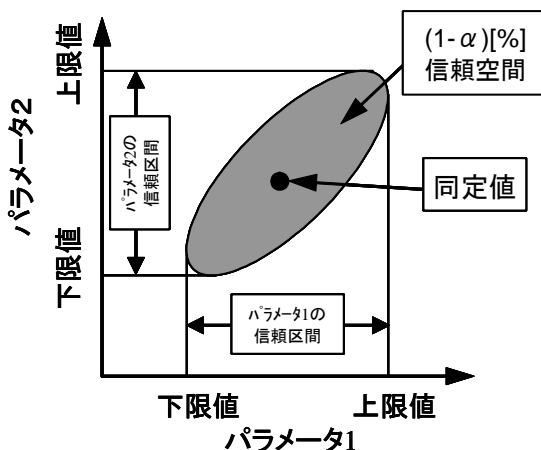


図 3.1.2-31 パラメータ信頼区間の模式図

本解析手法を用いたパラメータ値の同定とその不確実性評価例として、スウェーデンのエスポ地下研究施設において実施されたトレーサー試験 (Winberg et al., 2000) のうち、STT-2 と呼ばれる試験での非収着性トレーサーであるトリチウム水 (HTO) を対象とした検討について述べる。STT-2 では Feature A と呼ばれる単一亀裂内で 4.68 m の離間距離のボーリング孔間でトレーサー試験が行われている。

単一亀裂内の不均質な開口幅分布などに起因してチャンネル状の流れが生じ、投入孔から投入されたトレーサーは複数の選択的な経路を経由して揚水孔に至ることが考えられる。実際、HTO トレーサーの破過曲線には複数のピークが示されており (図 3.1.2-32 の観測値参照)、トレーサー注入孔と観測孔との間に複数の移行経路 (チャンネル) が存在している可能性を示唆している。そこで、パラメータ値の同定に際しては、複数の移行経路モデル (1 経路モデル~3 経路モデル: 図 3.1.2-33 参照) を用いた。本解析では非収着性トレーサーを対象としていることから、亀裂表面や基質部でのトレーサーの収着遅延効果は無視した。また、亀裂中の移流・分散に関するパラメータ値を検討することとし、マトリクス拡散に関するパラメータ値は室内試験などの測定値などから設定した。トレーサー試験の解析結果、試験結果と合わせて図 3.1.2-32 に示す。1 経路モデルでは観測値で示されているダブルピークを表現しきれないが、2 経路モデルと 3 経路モデルはほぼ同様に観測値を再現できていることが分かる。同定したパラメータ値とその 95 %信頼区間を表 3.1.2-3 に示す。図 3.1.2-34 には、1 経路モデルで得られた実流速と分散長の同定値と 95 %信頼区間楕円を、目的関数 S の等高線とともに示す。表 3.1.2-3 にはそれぞれの移行経路モデルの情報量基準 AIC も併せて示した。2 経路モデルは 1 経路モデルに比べて、流速が約 2 倍早い経路と約 8 倍早い経路の 2 経路と、移行距離の 1/50 程度の分散長との組み合わせにより、観測値のダブルピークを適切に表現できていることが分かる。また、情報量基準値が小さな 2 経路モデルの方が 1 経路モデルよりも観測結果を適切に説明できていることが分かる。一般に、現象を説明するパラメー

タの数を増やしたモデルの方が、ダブルピークなどの複雑な様子を示す観測値へのフィッティングの精度は向上する。その一方で、パラメータの数を増やした場合には同定値の不確か性が大きくなる。表 3.1.2-3 によれば、3 経路モデルの情報量基準値は 2 経路モデルの値とほぼ同じ値であることから、パラメータ数が増えてもフィッティングの精度が向上していないことが分かる。したがって、本検討では、2 経路モデルでトレーサー試験結果を十分説明可能であることが分かる。

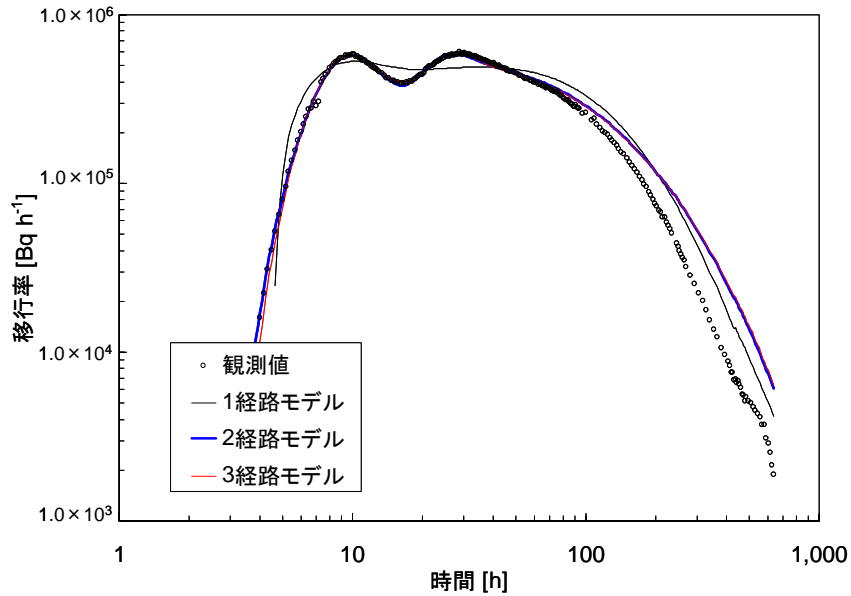


図 3.1.2-32 HTO トレーサー試験結果とその解析結果

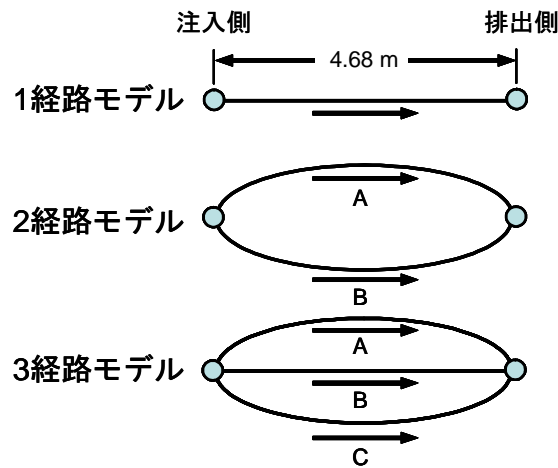


図 3.1.2-33 移行経路モデルの概念図

表 3.1.2-3 同定したパラメータ値と 95 %信頼区間

モデル	流速 [m h ⁻¹]			分散長 [m]			情報量 基準 ×10 ³ [-]	
	同定値	95 %信頼区間		同定値	95 %信頼区間			
		上限	下限		上限	下限		
1 経路モデル	0.12	0.12	0.13	6.20	5.71	6.69	6.34	
2 経路モデル	A	0.21	0.21	0.21	0.13	0.12	0.15	5.76
	B	0.96	0.94	0.98	0.17	0.16	0.18	
3 経路モデル	A	0.20	0.20	0.20	0.11	0.11	0.12	5.74
	B	0.96	0.96	0.96	0.12	0.11	0.13	
	C	0.66	0.64	0.67	0.02	0.002	0.038	

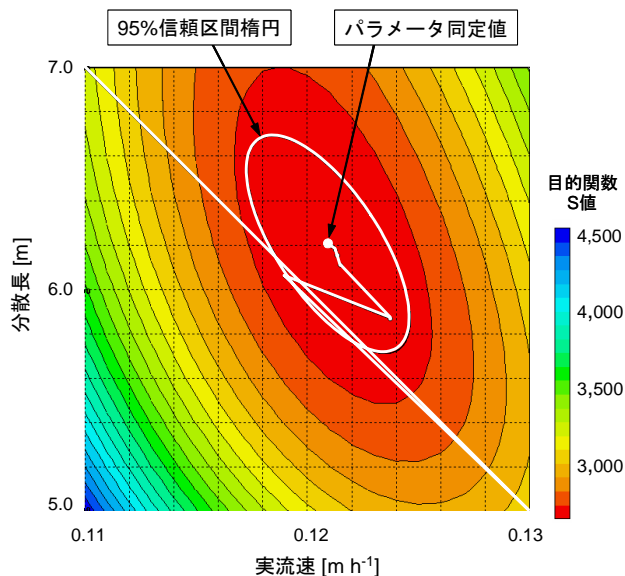


図 3.1.2-34 1 経路モデルで得られた実流速と分散長の 95 %信頼区間楕円
(白の折れ線は繰り返し計算時のパラメータ同定値の変化を示す)

(3) 結論

パラメータ値の同定および同定したパラメータ値の不確実性評価を、亀裂中の移流・分散、基質部への拡散を考慮した均質な 1 次元平行平板モデルに適用することで、原位置で実施されたトレーサー試験結果から各パラメータ値を同定するとともに、その信頼性を評価する方法について提案した。また、海外の地下研究施設で実施された非収着性トレーサー試験データを用いた事例検討を実施した。その結果、トレーサー試験から得られる濃度観測値に起因するパラメータ同定値の不確実性を定量的に評価するだけでなく、評価解析に際して設定する複数の作業仮説（移行経路本数などの概念モデル化の違いなど）が結果に与える影響を定量的に比較でき、適切な条件を選定することでモデル化に起因した不確実性を低減できる見通しを得た。

(4) 今後の課題

今後は、亀裂中の移流・分散に関するパラメータ値のみならず、マトリクス拡散に関わるパラメータ値の同定への適用や、非収着および収着性トレーサーを組み合わせ実施したトレーサー試験データについて検討することにより、トレーサーの収着遅延効果についての原位置における特性値の同定とその不確実性の定量的評価に資することができると考えられる。今後、深地層の研究施設計画などで実施されるトレーサー試験においても、不確実性の定量化手法のひとつとして活用を検討していく予定である。

3.1.3 堆積岩中の水理・物質移行現象の理解

(1) はじめに

地下水流動に関して、新第三紀の堆積岩においてはしばしば亀裂が認められ、粒子間隙中とともに亀裂中での流れも有意となる場合が確認されている（井尻ほか，1999a）。このことを踏まえ、第2次取りまとめでは、亀裂を有する堆積岩の核種移行解析に際して、亀裂ネットワークモデルでの解析結果と連続体モデルでの解析結果を重ね合わせることにより評価を行った（井尻ほか，1999b）。しかし、この種の岩盤中での物質移行は、本来亀裂部と岩石基質部双方の影響を受けるものと考えられることから、亀裂部と岩石基質部の水理・物質移行特性を、実際の試験などを通じて定量的に把握することが重要である。以上のことから、幌延地域の堆積岩を対象として、亀裂を有する堆積岩中の水理・物質移行特性を定量的に把握し、この現象を表現するモデルの構築に資することを目的とした室内試験を行った（畑中ほか，2004；下茂・熊本，2004）。

(2) 研究内容

幌延の深地層の研究施設計画におけるボーリング調査のうち、HDB-4, 6, 7孔（山本ほか，2003a, 2004a, 2004b）で得られた岩芯試料（ボーリングコア）から、それぞれ稚内層、声間層、勇知層の試料を採取した。本試験では、各層の3ヶ所の深度（200, 300, 450 m 付近）のボーリングコア（直径 86 mm）を再コアリングし、直径・高さともに 50 mm の試料に整形した。亀裂を含む試料は、亀裂面に平行に再コアリングした。亀裂を含まない試料は、堆積構造が明瞭に確認できるものは堆積構造に対して水平および垂直方向に、また堆積構造が確認できないものは、直交する二方向からそれぞれ再コアリングした。

上述の試料を用いた予備試験において、亀裂の有無により試料の透水性に大きな差が確認されたため、亀裂の有無に応じた試験方法を選択した（表 3.1.3-1）。亀裂を含まない試料（以下、「インタクト試料」という）については、透水試験法として、低透水性岩石への適用実績のあるトランジェントパルス法を採用した。物質移行試験としては、試料の透水性が低く、移流・分散効果を見逃すことができると考えられることから、岩石基質部の拡散係数を求めることを目的とした拡散試験を行った。一方、亀裂を含む試料（以下、「亀裂試料」という）については、透水性が比較的高いことが想定されたことから、定流量透水試験およびトレーサー試験を実施した。

表 3.1.3-1 室内試験内容

	透水試験	物質移行試験
インタクト試料	トランジェントパルス法	拡散試験(透過拡散法)
亀裂試料	定流量透水試験法	トレーサー試験

インタクト試料を対象に行ったトランジェントパルス法による透水試験は、一定の封圧条件下に置いた試料に対して、上流側貯留槽に瞬時に水圧を作用させ、上流側および下流側の貯留槽における圧力の経時変化から透水係数を求めるものである。透水係数の算定にあたっては、温度による解析誤差を低減するために上流側と下流側の水圧の差をとる方法（差圧を用いた Hsieh 法）（下茂ほか，2003）を用いた。試験結果から、稚内層のインタクト試料の透水係数が $10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ オーダーであること、また、声間層と勇知層の透水性の差は見られず、稚内層に比べ 2 オーダー程度透水性が高いことが分かった（図 3.1.3-1）。別途測定した各試料の有効間隙率に関しては、相対的に間隙率が低い稚内層（33.2～41.4 %）が勇知層（44.0～46.9 %）や声間層（52.2～59.8 %）に比べて透水性が低い一方で、勇知層は声間層に比べ 1 割程度間隙率が低いにも拘らず、透水性は同程度であるという結果が得られた。このことから、勇知層は声間層に比べ、試料全体の間隙率は低いものの、透水性を支配する連続した間隙の割合は同程度であると考えられる。

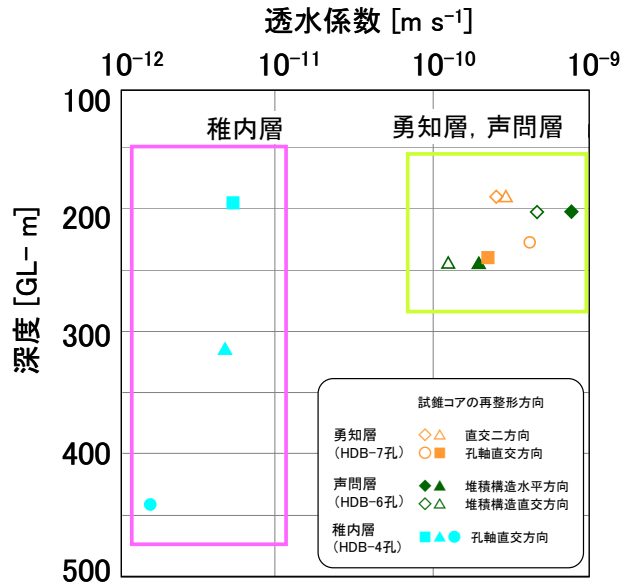


図 3.1.3-1 インタクト試料での透水試験結果一覧

亀裂試料において実施した定流量透水試験では、試料採取深度の有効応力に相当する封圧条件下に置いた試料に対して通水し、定常状態での流量と圧力を測定した。流量は上流側の注入量を電子天秤にて、注入圧力は上流側に設置した圧力計にてそれぞれ測定を行った。

稚内層と声問層の試料での試験で得られた流量と圧力から、亀裂の透水量係数 T_f [$m^2 s^{-1}$] および、試料の透水係数 K [$m s^{-1}$] (試料の全断面を水が通ると仮定) を求めた結果、亀裂の透水量係数 T_f は $10^{-11} \sim 10^{-10} m^2 s^{-1}$ 、試料の透水係数 K は稚内層で $10^{-9} \sim 10^{-8} m s^{-1}$ 、声問層で $10^{-10} \sim 10^{-9} m s^{-1}$ のオーダーであった (表 3.1.3-2)。インタクト試料の透水試験結果 (図 3.1.3-1) と比較すると、稚内層の亀裂試料の透水係数は、インタクト試料よりも 3~4 オーダー高い透水性を有することが分かった。稚内層では間隙率が相対的に低いため、透水性に対する亀裂の影響が顕著であると考えられる。また、亀裂の透水量係数と封圧との関係 (図 3.1.3-2) から、封圧の増加に伴い透水性が低下する傾向が確認された。これは、封圧の増加に伴って亀裂が閉塞したことにより透水性が低下したものと考えられる。

表 3.1.3-2 亀裂試料での透水試験結果一覧

地層名	採取深度 [m]	封圧 [MPa]	亀裂の透水量係数 T_f [$m^2 s^{-1}$]	試料の透水係数 K [$m s^{-1}$]
声問層	202.00~202.60	0.8	7.65×10^{-11}	1.89×10^{-9}
		1.2	4.87×10^{-11}	1.36×10^{-9}
		1.6	1.74×10^{-11}	7.31×10^{-10}
	245.10~245.60	1.9	3.84×10^{-10}	8.69×10^{-10}
稚内層	195.00~195.70	2.4	2.18×10^{-10}	5.56×10^{-9}
	315.65~345.99	0.8	1.44×10^{-10}	3.67×10^{-9}
		1.6	9.35×10^{-11}	2.38×10^{-9}
		2.4	5.94×10^{-11}	1.51×10^{-9}
		3.2	4.41×10^{-11}	1.12×10^{-9}
441.50~442.00	2.4	4.00×10^{-10}	1.02×10^{-8}	

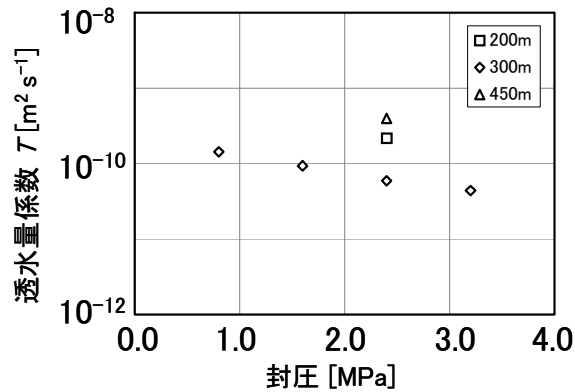
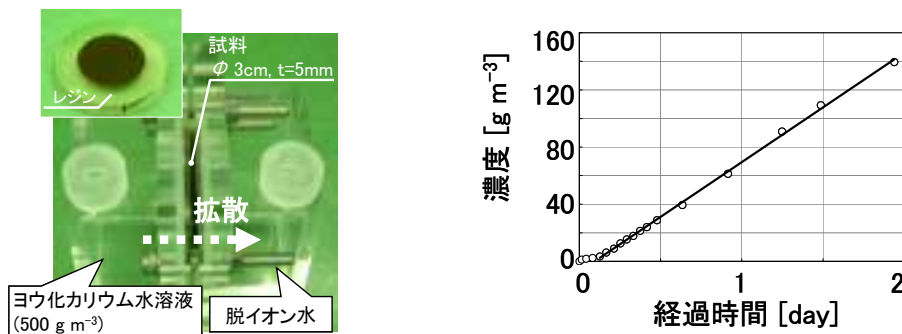


図 3.1.3-2 亀裂試料での封圧と透水量係数の関係（稚内層）

インタクト試料での拡散試験は、直径 3 cm、厚さ 5 mm の円盤状に再整形し、周囲をエポキシ系樹脂で固めた試料を用いて、透過拡散法により行った（図 3.1.3-3(a)）。

まず試料をはさんだ両側のセルに脱イオン水を注入して試料を含水し、トレーサーセル側の脱イオン水をトレーサー溶液（ヨウ化カリウム水溶液：I 濃度=500 g m⁻³）と交換した後、測定セル側の溶液を一定時間ごとに採取・分析することにより、トレーサー濃度の経時変化を測定した。溶液の分析には、ICP 発光分光分析法（定量下限値：0.01 g m⁻³）を用いた。



(a) 実験装置概観 (b) 試験結果（採取深度 202.00～202.60 m，声問層）

図 3.1.3-3 インタクト試料での拡散試験

この試験結果（図 3.1.3-3(b)）を用いて、定常状態における 1 次元拡散方程式から導出される近似式(3.1.3-1)式により実効拡散係数 D_e [m² s⁻¹] を求めた。

$$C_d = \frac{S_r \cdot H \cdot C_0}{V_m} \left(\frac{D_e \cdot t}{H^2} - \frac{\alpha}{6} \right) \quad (3.1.3-1)$$

ここで、 C_d ：測定セル中のトレーサー濃度[g m⁻³]、 S_r ：試料の断面積[m²]、 H ：試料の厚さ[m]、 C_0 ：トレーサーセル中のトレーサー濃度[g m⁻³]、 V_m ：測定セル中の溶液体積[m³]、 t ：時間[s]であり、収着容量 α は、 $\alpha = n_e + \rho \cdot K_d$ (n_e ：試料の有効間隙率[-]、 ρ ：試料の乾燥密度[kg m⁻³]、 K_d ：分配係数[m³ kg⁻¹]) で与えられる。

また、見かけの拡散係数 D_a [m² s⁻¹] を次式により求めた。

$$D_a = \frac{H^2}{6T_{int}} = \frac{D_e}{\alpha} \quad (3.1.3-2)$$

ここで、 T_{int} は(3.1.3-1)式を外挿して求められる濃度 $C_d = 0$ での時間[s]である。

拡散試験の結果を表 3.1.3-3 にまとめる。拡散係数について、本試験で得られた値を、第 2 次取りまとめで整理した新第三紀泥岩・凝灰岩における既往の値と比較 (図 3.1.3-4) したところ、本試験で得られた値は、同程度の有効間隙率を有する新第三紀泥岩・凝灰岩の平均的なものであることが示された。また、収着容量から求めた分配係数が 0 に近い値であることから、試料へのトレーサーの収着量は極めて小さいものと考えられる。

表 3.1.3-3 拡散試験結果一覧

地層名	採取深度 [m]	試錐コアの再整形方向	実効拡散係数 D_e [$m^2 s^{-1}$]	見掛けの拡散係数 D_a [$m^2 s^{-1}$]	収着容量 α (-)	分配係数 K_d [$m^3 kg^{-1}$]	有効間隙率 n_e [-]
勇知層	189.65~190.00	直交二方向	1.44×10^{-10}	5.52×10^{-10}	0.261	0.0000	0.447
			9.50×10^{-11}	9.41×10^{-9}	0.010	0.0000	0.469
	226.85~228.27 240.00~240.60	孔軸直交方向	1.17×10^{-10}	1.02×10^{-9}	0.115	0.0000	0.440
			2.32×10^{-10}	1.70×10^{-8}	0.014	0.0000	0.457
声間層	202.00~202.60	堆積構造水平方向	6.78×10^{-10}	6.01×10^{-10}	1.128	0.0005	0.414
		堆積構造直交方向	3.30×10^{-10}	1.58×10^{-9}	0.209	0.0000	0.414
	245.10~245.60	堆積構造水平方向	2.59×10^{-10}	1.56×10^{-9}	0.166	0.0000	0.384
		堆積構造直交方向	2.08×10^{-10}	1.29×10^{-9}	0.161	0.0000	0.332
稚内層	195.00~195.70	孔軸直交方向	2.34×10^{-11}	6.86×10^{-11}	0.342	0.0000	0.414
	314.00~314.40		2.55×10^{-11}	3.36×10^{-11}	0.758	0.0002	0.384
	441.50~442.00		8.16×10^{-12}	3.84×10^{-11}	0.212	0.0000	0.332

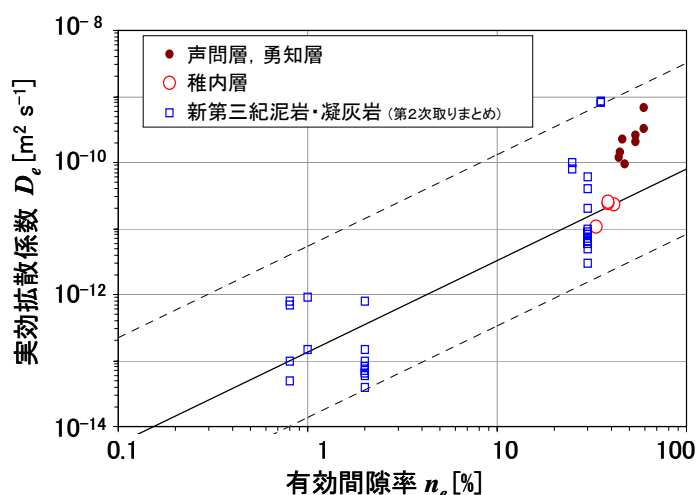


図 3.1.3-4 実効拡散係数と有効間隙率の関係 (既往データとの比較)

亀裂試料におけるトレーサー試験では、三軸セル内の試料に所定の封圧を载荷した状態で、試料の下側から上側へトレーサー溶液 (ヨウ化カリウム水溶液 : I⁻ 濃度=1,000 g m⁻³) および脱イオン水を注入し、排出される溶液のトレーサー濃度の経時変化を電気伝導度計により測定した。併せて、電気伝導度計による測定結果の確認を目的として、排出される溶液を採取・分析し、拡散試験と同様 ICP 発光分光分析法によりトレーサー濃度を測定した。

試験で得られた破過曲線 (図 3.1.3-5) において、トレーサー濃度が注入濃度 (C/C₀=1) に達する前にほぼ安定していることや、注入する液体をトレーサー溶液から脱イオン水に切り替えた後 (図 3.1.3-5 の経過時間約 1,500 min 以降) の濃度低下が遅れて生じていることから、トレーサー溶液が試料内部の岩石基質部へ拡散している可能性が考えられる。このことから、トレーサー試験結果の解析には、岩石基質部への拡散と単一亀裂内での移流分散の両方を考慮した手法を用いた。

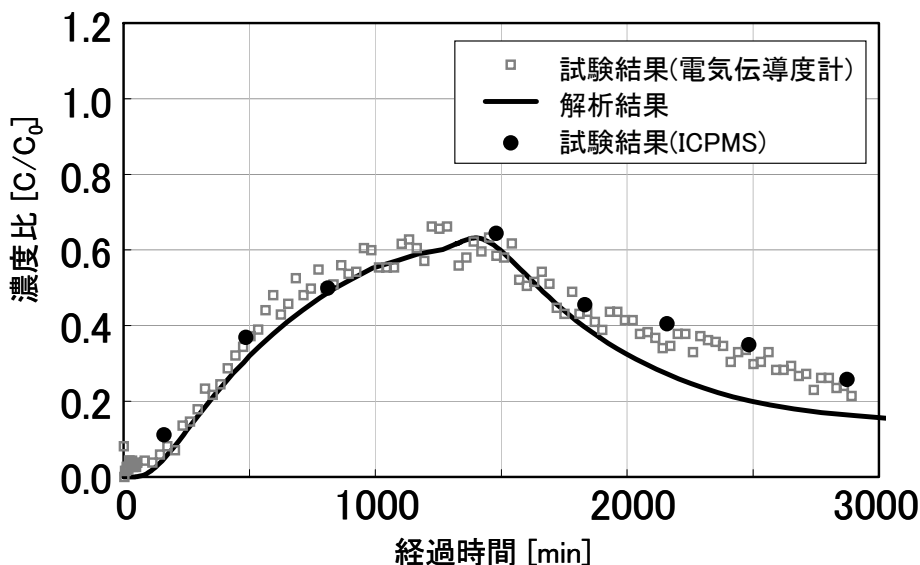


図 3.1.3-5 トレーサー試験結果（採取深度 202.00～202.60 m，封圧 1.6 MPa，声問層）

トレーサー試験の条件を与えた 3 次元物質移行解析（Therrien, 1996）で得られた破過曲線を試験結果とフィッティングすることにより，亀裂部の物質移行開口幅 e_T および分散係数（分散長） α を求めた（表 3.1.3-4）。

表 3.1.3-4 トレーサー試験解析結果一覧

地層名	採取深度 [m]	封圧 [MPa]	亀裂内実流速 v [$m\ s^{-1}$]	水理的開口幅 e_H [m]	物質移行開口幅 e_T [m]	分散長 α [m]	
声問層	202.00～202.60	0.8	1.77×10^{-3}	4.72×10^{-6}	4.72×10^{-6}	0.0010	
		1.2	1.83×10^{-3}	4.06×10^{-6}	4.06×10^{-6}	0.0010	
		1.6	1.73×10^{-3}	2.88×10^{-6}	2.88×10^{-6}	0.0010	
	245.10～245.60	1.9	1.47×10^{-3}	3.75×10^{-6}	7.00×10^{-5}	0.0350	
稚内層	315.65～345.99	195.00～195.70	2.4	9.83×10^{-4}	6.69×10^{-6}	1.00×10^{-5}	0.0015
		0.8	1.52×10^{-3}	5.83×10^{-6}	7.00×10^{-6}	0.0015	
		1.6	1.31×10^{-3}	5.05×10^{-6}	8.00×10^{-6}	0.0015	
		2.4	1.33×10^{-3}	4.34×10^{-6}	8.00×10^{-6}	0.0015	
		3.2	1.35×10^{-3}	3.93×10^{-6}	8.00×10^{-6}	0.0015	
	441.50～442.00	2.4	8.21×10^{-4}	8.19×10^{-6}	1.40×10^{-5}	0.0015	

解析結果は，試験結果から得られた破過曲線を良く再現している（図 3.1.3-5）。また，分散長は既往の報告値（新藤・井伊, 1995）とほぼ同じ傾向にあり（図 3.1.3-6），物質移行に寄与する物質移行開口幅 e_T は，透水量係数から逆算した水理的開口幅 e_H よりやや大きな値となった。透水性に寄与する水理的開口幅は，亀裂幅の狭い部分の影響が支配的であるのに対し，物質移行開口幅は，平均的な開口幅の影響を受けるため，水理的開口幅よりも数倍以上大きくなることが報告されている（Abelin et al., 1985）。本試験結果では，稚内層試料では，物質移行開口幅 e_T は水理的開口幅 e_H の最大で 1.7 倍，声問層で 1.9 倍程度でありそれほど大きな差にはなっていないが，これは，亀裂が十分に密着しており，開口幅の亀裂面内での不均一性が低かったためと推察される。また，既往の原位置トレーサー試験結果では，花崗岩地域（釜石鉾山（岩手県））の亀裂において物質移行開口幅 e と透水量係数 T との間に $e = 2\sqrt{T}$ の関係が示されており（Shimo et al., 1999），本試験結果はこの傾向とも概ね整合的である（図 3.1.3-7）。なお，別途整形したブロック試料（声問層試料：ふたつの半割ブロックに厚さ 0.05 mm の金属薄片をはさんだ 10 cm×10 cm×20 cm の平行平板試料）

での試験・解析結果でも、分散長はコア試料などと同様の傾向を示した（図 3.1.3-6）。一方、透水量係数と物質移行開口幅の関係は、亀裂面が研磨された平行平板であり、開口幅の亀裂面内での不均一性が低いことから、コア試料などの傾向より小さめの物質移行開口幅が得られたものと考えられる（図 3.1.3-7）。

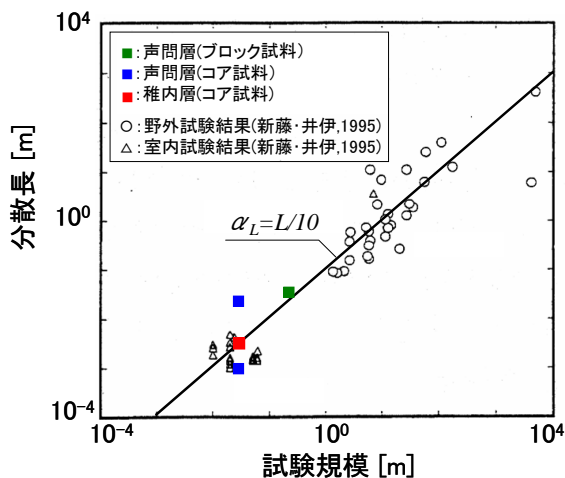


図 3.1.3-6 分散長と試験スケールとの関係(新藤・井伊 (1995) に加筆)

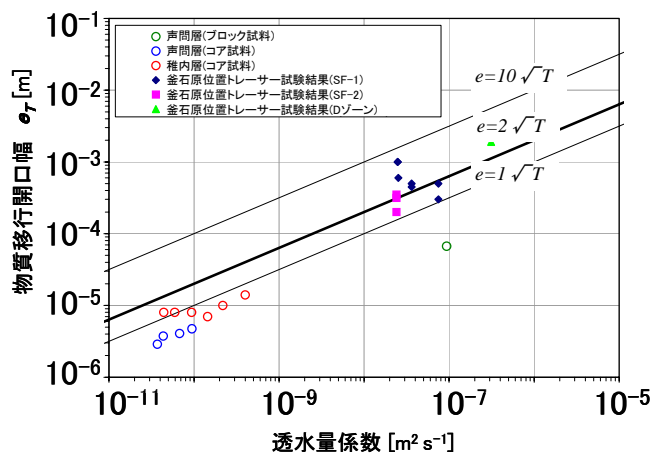


図 3.1.3-7 透水量係数と物質移行開口幅の関係

(3) 結論

今回の試験結果から、岩相の違いによって地下水流動に関する特徴が異なる可能性が示された。対象とした岩相のうち、声間層などに比べ間隙率が相対的に低い稚内層では、粒子間隙よりも亀裂が卓越した水みちを形成する可能性が高く、間隙率の高い声間層では亀裂の有無による透水性の差は顕著でなかった。実際の堆積岩における物質移行現象のモデル化にあたっては、亀裂部と岩石基質部それぞれの水理・物質移行特性を考慮し、適切に表現することが必要である。亀裂が卓越した水みちを形成する場合には、物質移行に関しては、亀裂内の移流分散だけでなく、岩石基質部へのマトリクス拡散による遅延効果も高いものと考えられる。亀裂部の物質移行開口幅や分散長については、既往データと整合的な結果が得られた。特に、花崗岩地域の原位置トレーサー試験結果と同様に、物質移行開口幅を透水量係数と関連づけて整理できる可能性が示唆された。また、稚内層では、同等の有効間隙率を有する同種の岩石に比べて、岩石基質部の透水係数が $10^{-12} \text{ m s}^{-1}$ オーダーと極めて低い値であるのに対し、拡散係数は平均的な値が得られた。これは、本試験に用いた試料の間隙径が極めて小さく、水の流れに対する抵抗力が大きいことから、透水係数の増加に寄与しないことが

影響しているものと考えられる。

本検討で得られた結果は、堆積岩を対象とした物質移行についてのモデルの検討に利用できるものと考えられる。

(4) 今後の課題

堆積岩での物質移行評価では、亀裂部および岩石基質部の水理・物質移行特性に基づいて適切なモデルを選択することが重要である。幌延の深地層の研究施設計画で得られる異なる岩相や深度の試料についてデータの蓄積を図るとともに、透水性に寄与する亀裂の頻度や連続性などの情報に基づいて、亀裂を有する堆積岩中の地下水流動と物質移行現象を把握するためのモデルに関する知見を整備していく。

3.2 地下水・間隙水水質形成モデルの高度化

(1) はじめに

地下水・間隙水水質は、設計における人工バリア材の設計や材料選定および長期的挙動、ならびに安全評価における放射性核種の溶解度、緩衝材および岩石への収着・拡散などの移行特性に影響を与える重要なパラメータである。

地下水に関しては、第2次取りまとめにおいて、既存地下水水質データの統計学的解析と地球化学的解釈に基づき地下水水質の分類を行うとともに、安全評価の観点から重要となる因子（pH, Eh, イオン濃度）についてそれらを支配する地球化学プロセスを整理し、化学平衡に基づくモデルにより、安全評価に用いるべき一般化した地下水水質の設定を行った。第2次取りまとめ以降は、引き続き地下水の実測データを拡充し、実際の地質環境への適用に向けた検討事例を増加し、地下水水質形成モデルの信頼性向上を図るとともに、このために必要となる最新の地球化学的知見や基本データ（熱力学データなど）について重要度の検討を行い、安全評価上重要な地球化学元素の熱力学データベースの整備などを行うことを課題とした（核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会, 2000）。またこれに基づき、概要調査地区選定段階などでの限られた情報に基づく地下水水質の推定を行うことができるようにすることも課題とした。

一方、間隙水に関しては、バッチ式でのベントナイト-水反応試験を様々な液固比で行い、圧縮系に相当するような低液固比条件にも外挿可能な間隙水水質形成モデルを構築し、第2次取りまとめにおける間隙水水質の設定に反映した。第2次取りまとめ以降は、処分環境に類似した複雑な系での間隙水水質評価のため、地下水と人工バリア材料の長期の相互作用に関する室内試験や類似する天然の事例観察を通じて、人工バリアに浸入した地下水が緩衝材や腐食生成物と反応することによる間隙水水質の時間的・空間的变化を推定するためのモデルの高度化および検証を進めることを課題とした（核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会, 2000）。また、モデル開発と並行して圧縮系での間隙水水質の時間的・空間的变化を把握するための測定手法を開発することも課題とした。

上述した課題を整理すると、地下水・間隙水水質形成モデルの高度化に関する課題は、安全評価におけるパラメータ設定の基本となる地下水・間隙水水質の信頼性の向上として、また地球化学元素の熱力学データベース整備は、地下水・間隙水水質の推定で用いる基本データの整備として位置づけられる。

事業の実施主体では、人工バリアの設計や材料選定に関する地球化学的制約条件を明確にし、安全評価へ適切に反映することを課題としており（原子力発電環境整備機構, 2004）、一方安全規制の観点からは、評価が過度に保守的にならないパラメータの検討が求められている（総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会, 2003）ことから、このようなニーズに関連する地下水・間隙水水質形成モデルの高度化を図ることが必要である。また、地下水・間隙水水質形成モデルの開発に必要な最新のデータを取り込んだデータベースの更新も技術開発課題として挙げられている（原子力発電環境整備機構, 2004）。特に処分環境下でセメント系材料が用いられた場合、セメント溶液による地下水・間隙水水質への影響を評価するための熱力学データベースが必要である。なお、地下水の地球化学特性については、処分地選定プロセスにおける概要調査あるいはそれ以降の調査において考慮すべき環境要件の一つとされている（原子力安全委員会, 2002）。

地下水・間隙水形成モデルに関する国内外の研究動向としては、地下水に関しては、国内では、水-岩石反応の化学平衡とマスバランスを基にした熱力学的解析（鹿園, 2001a）や水-岩石反応の反応速度と地下水流動による地下水水質への影響に関する理論的解析（鹿園, 2001b）に基づき水質形成のモデル化が試みられている。海外では、多変量解析手法の一つである主成分分析に地下水の混合とマスバランス計算を組み合わせた M3 (Multivariate Mixing and Mass balance) 解析手法による水質形成のモデル化が行われている

(Laaksoharju et al., 1999)。また、統計学的解析結果の解釈にあたり長期的な水理地質学的変化による地下水水質の時間的・空間的变化も考慮し、地下水水質の分類やモデル化を行っている事例もある (Luukkonen and Kattilakoske, 2001)。さらに近年、地下環境における微生物の現存量が明らかになってきており (たとえば, Pedersen, 2000)、水質形成における微生物影響として、鉱物の溶解・沈殿反応や酸化還元反応への関与が指摘されている (Fredrickson and Fletcher (eds.), 2001)。一方、間隙水に関しては、国内外においてバッチ系で液固比を変えた条件で得られた間隙水組成を解釈するためのモデル開発が行われている (小田・柴田, 1999; Wersin, 2003) が、間隙水水質の時間的・空間的な変化を推定するためのモデル開発はあまり行われていない。

上述した第 2 次取りまとめ以降の課題に対し、地下水に関しては、実際の地質環境における地表からの調査段階で得られる地下水データの信頼性評価や深部地下水水質の推定手法を検討することとした。間隙水に関しては、人工バリアの設計や材料選定に影響を与える圧縮ベントナイト中間隙水水質の時空間変化を把握するための測定手法の開発、データ取得およびモデル開発を行うこととした。また安全評価における地下水・間隙水設定で必要な基本データの整備に関しては、第 2 次取りまとめの段階で整備した処分環境でセメント系材料が用いられた場合に想定されるような高アルカリ溶液と人工バリア材の反応に関わる鉱物などの熱力学データを拡充し、データベースを整備することとした。これらに対し、以下の個別課題を設定した。

- ・ 深部地下水データの信頼性評価および深部地下水水質推定手法の検討
- ・ 間隙水水質の時空間変化に係わる測定手法の開発、データ取得およびモデル開発
- ・ 高アルカリ条件下での緩衝材の変質に係る鉱物などの熱力学データベースの整備

(2) 研究内容

(i) 深部地下水データの信頼性評価および深部地下水水質推定手法の検討

実際の地質環境を対象とした調査における深部地下水データの測定は、ボーリング孔内での pH, Eh などの原位置測定または採水後の地表での測定になるが、調査対象領域の全ての地下水に対しボーリング孔内で原位置測定を行うことは実質上困難であり、大部分の地下水データは採水後に地表で測定されたものになると予想される。その場合、地下水データの信頼性評価や地表で測定されたデータをもとに原位置での地下水水質を推定するための補正手法の検討が重要になる。

pH や Eh などのパラメータは、温度、圧力の変化や大気との接触による影響を受けやすいため、地下深部から採水された地下水の地表での測定値は、地下での状態を反映しているとは言い難い。そのため、瑞浪の深地層の研究施設計画では、ローカルスケールにおける調査において、数本のボーリング孔で原位置測定を実施しており (分冊 1 4.2.3 項)、また幌延の深地層の研究施設計画では、地表で採水された地下水の測定・分析に加え、今後原位置での測定も行い、信頼性のある地下水データを取得することが予定されている (分冊 1 4.3.3 項)。なお、瑞浪の深地層の研究施設計画では、原位置測定値の信頼性について、地下水中の溶存成分濃度に基づく熱力学的解析や pH, Eh に関与する鉱物 (炭酸塩鉱物や含鉄・含硫黄鉱物など) の変質状態の確認に基づく理論的な検討も行っている (分冊 1 4.2.3 項)。

地表からの調査段階では、採水後に地表で測定・分析された地下水データが主であるため、地表で測定されたデータと原位置で測定されたデータを比較することにより、地下水の採水に伴う地下水水質 (pH, Eh およびイオン濃度) への影響を定量的に把握し、その原因を推定することが重要である。これにより、地表からの調査段階で得られる地下水データの信頼性評価が可能になると考えられる。また、地表での採水に伴う水質変化の原因を把握することで、逆に、地表で得られたデータをもとに地下深部における地下水水質を推定することも可能であると考えられる。

幌延の深地層の研究施設計画では、現段階では地表で測定された地下水データのみであり、今後取得される原位置測定値との比較検討により、地表での測定値の信頼性について検討を進めていく必要がある。ここでは、幌延の深地層の研究施設計画で対象とするものと同様な堆積岩系岩盤に海水系地下水が存在する千葉県南西部の茂原を一例に、地表で測定された深部地下水データの信頼性について、地下水水質の熱力学的解析や地下水が存在する地層中の鉱物に関する情報との整合性などをもとに検討した例 (Sasamoto et al., 2005) について紹介する。また幌延の深地層の研究施設計画で取得された地下水データについて、茂原での知見も踏まえ、地表で測定された地下水データの熱力学的な解釈をもとに、一般的に考えられている深部地下水に関する地球化学的知見に基づき、地表での測定値の補正を予察的に試み、堆積岩系岩盤における設計手法の適用性確認で用いる深部地下水水質の設定を行った (分冊 2 5.3.1 項)。

茂原の地下水は、圧縮ベントナイト中におけるガラスの長期変質挙動のナチュラルアナログ研究の一環として調査が行われた (Kamei et al., 2000)。茂原には約 100 万年前に堆積した泥質岩が分布し、堆積時に地層中に閉じ込められた海水 (化石海水) が存在する。これらの化石海水は、多量のメタンガスを含有している。茂原は、南関東ガス田の中に位置し、地下数百メートル~千メートル以深のボーリングが掘削されており、深部の地下水が地表に湧出している場所もある。茂原の地質、地下水、ガスの特性は、幌延の深地層の研究施設計画で対象とするそれらと類似している。上記の様な特徴を有する茂原の地下水に対して、地表に湧出した地下水の測定・分析結果をもとに、地球化学コード **GWB (The Geochemist's Workbench : Bethke, 1996)** による熱力学的解析を行い、地下水が存在する地層中の鉱物に関する情報と照らしあわせ、地表で測定・分析された地下水データの信頼性について検討した (Sasamoto et al., 2005)。

深部地下水の pH は一般に方解石の溶解平衡により緩衝されていると考えられる (たとえば, Iwatsuki et al., 1995 ; Sasamoto et al., 1999 ; Yui et al., 2004)。ここでは、熱力学的解析結果の一例として方解石の飽和指数 (SI : Saturation Index = $\log IAP/K_{sp}$, IAP : 溶液中に存在するイオンの活量積, K_{sp} : ある反応が平衡状態にある時の溶液に存在するイオンの活量積) の計算結果を示す (図 3.2-1)。なお解析にあたっては、Kamei et al. (2000) で報告されている茂原の地下水データ数は 4 件と少ないため、南関東ガス田に位置し、茂原と同様な化石海水である他地域の地下水データ (杉崎ほか, 1963) も含めて検討した。地下水と鉱物との飽和 (平衡) 状態の検討にあたっては、熱力学データの誤差、地下水の測定・分析値の誤差なども考慮し、Langmuir (1997) の事例を参考に方解石に対する平衡状態として、 $SI=0\pm 0.1$ (図中の赤塗りの部分に相当) を考慮した。

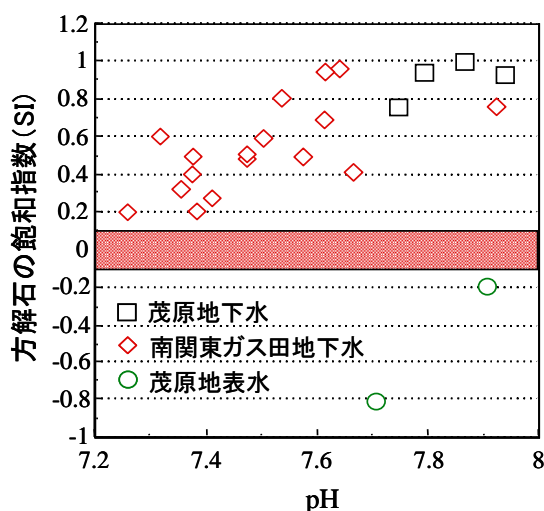


図 3.2-1 方解石の飽和指数計算結果
(南関東ガス田の地下水データは、南関東ガス田に位置する茂原以外のデータである)

図 3.2-1 から分る様に地下水は方解石に対して過飽和な状態 ($SI > 0.1$) である。方解石は、低温の地下水環境下においても一般に比較的溶解しやすい鉱物であり、滞留時間の長い（年代の古い）地下水であれば、一般的に考えられている深部地下水に関する地球化学的知見に基づくと地下水は方解石に対して平衡であると考えられる。茂原地域の地下水は化石海水であり、また地層中には方解石が同定されていることから、 $SI > 0.1$ となったのは、地表で測定・分析された地下水データに問題があると考えられる。この原因として、地下から地表に地下水が上昇してくる際に圧力が低下し、それに伴い地下水中に溶存していた炭酸ガスが遊離（脱ガス）し、地下水の pH や炭酸濃度が変化したことが推定される。また、地表で測定された Eh の値 ($Eh = \text{約} -50 \text{ mV}$: Kamei et al., 2000) をもとに熱力学的解析を行った結果、黄鉄鉱の SI は、 $SI < -0.3$ となり、地下水は黄鉄鉱に対して未飽和な状態であり、このような Eh では、黄鉄鉱は溶解すると推定された。しかしながら、黄鉄鉱は地層中に存在することが確認されており、溶解せずに残存している。したがって、実際の地下における地下水の Eh は、地表で測定された Eh よりも低く、黄鉄鉱が安定に存在するような酸化還元環境であると考えられる。この原因として、地表での採水に伴う大気中の酸素の混入や微量の硫化水素ガスの脱ガスにより地下水の Eh が変化したことが推定される。以上述べたように、地表で測定された pH, Eh に基づく水質の熱力学的解析結果は、深部地下水水質を支配すると考えられる地球化学的知見（たとえば、方解石に対して平衡など）や地層中の鉱物などの情報と整合しておらず、地表で測定された pH, Eh の信頼性は低いと考えられた。

また、このような採水に伴う水質変化の要因として溶存ガス（炭酸ガス、微量の硫化水素ガス）の遊離を仮定し、地層中に認められ水質を支配すると考えられる鉱物の情報と整合するような補正をおこない深部地下水水質を推定した。推定された深部地下水の pH, Eh は、地表で測定された pH より最大で 1 程度低く、Eh では -150 mV 程度低くなった。このことから、地表で測定されたデータをもとに深部地下水水質を推測するためには、溶存ガスの遊離による影響に対する補正が重要になることが推定された。

同様な結果は、幌延の深地層の研究施設計画において取得された採水後に地表で測定された地下水データの熱力学的解析からも得られた。そこで、地表で測定・分析されたデータをもとに、地表での揚水に伴い溶存ガスの遊離や大気などの影響を受けていると考えられる成分（たとえば、pH, Eh など）について一般に考えられている深部地下水に関する地球化学的知見をもとに補正を加え、地下水水質の推定を試みた（核燃料サイクル開発機構, 2004）。補正にあたっては、地球化学モデルにおける仮定の不確実性や使用する熱力学データの不確実性なども考慮し、鉱物との平衡を仮定して補正を加えた成分（たとえば、C や Si の濃度）に対しては各鉱物（たとえば、カルサイトや非晶質シリカ）の飽和指数に幅 ($SI = 0 \pm 0.5$) を持たせた。その他の成分（たとえば、Na, Cl 濃度）に対しては、HDB-1 孔（山本ほか, 2002a）、HDB-3 孔（山本ほか, 2003b）および HDB-6 孔（山本ほか, 2004a）で実測された地下水データの幅をもとに設定した。このような手法により、幌延の研究用地付近での深部地下水水質の幅を予察的に推定した（核燃料サイクル開発機構, 2004）。同様な手法は、堆積系岩盤における設計手法の適用性確認（分冊 2 5.3.1 項）において、幌延の研究用地付近の深度 450m 程度の深部地下水水質を推定する場合にも用いられた。その際には、幌延の研究用地に最も近いボーリングである HDB-6 孔のデータに基づき推定した（表 3.2-1）（分冊 2 5.3.1 項）。表 3.2-1 に示す深部地下水水質の推定には、地球化学コード PHREEQC (Parkhurst and Appelo, 1999) を用いた。

ただし、表 3.2-1 に示した水質幅の推定にあたり利用した地球化学的知見は、第 2 次取りまとめの地下水水質形成モデルで考慮したような一般性のあるものだが、幌延の深地層の研究施設計画において取得された地下水に対する妥当性は現段階では確認されていない。今後、原位置で測定された信頼性の高い実測値や詳細な鉱物情報などをもとに、pH や Eh などの補正にあたり考慮した地球化学的知見の妥当性や深部地下水水質の補正方法の適用性を確認していくことが必要である。また、幌延の深地層の研究施設計画において取得された地下水に

は多量の有機物とガス（主にメタンガス）が含まれており、鉱物-水反応といった無機的な反応だけでなく、有機物・微生物が関与した有機的な反応も地下水水質形成に大きく関与していると考えられる。今後、この様な有機的な反応の水質への影響についても考慮していく必要がある。

表 3.2-1 HDB-6 孔における深度 450 m での地下水水質推定値

熱力学データベース	JNC-TDB 011213c2.tdb		溶存化学種	[mol kg ⁻¹]	[mg kg ⁻¹]
温度 [°C]	25		HCO ₃ ⁻	2.989E-02	1823.29
pH	6.752		CO ₃ ⁻	2.037E-05	1.22
pe	-2.804		SO ₄ ²⁻	4.375E-06	0.42
Eh [mV]	-166		N ₂ ²⁾	-	-
イオン強度	2.579e-01		NH ₄ ⁺	7.761E-03	139.70
電荷バランス [eq] ¹⁾	6.762e-15		Fe ²⁺	1.523E-05	0.85
元素名	[mol kg ⁻¹]	[mg kg ⁻¹]	H ₄ SiO ₄ (aq)	1.139E-03	109.34
Na	2.279E-01	5239.42	HPO ₄ ²⁻	5.060E-07	0.04
K	2.077E-03	81.21	PO ₄ ³⁻	7.623E-12	0.00
Mg	5.784E-03	140.61			
Cl	2.202E-01	7806.09	飽和指数		
Br	5.632E-04	45.00	方解石	0.00	
Ca	2.093E-03	83.93	非晶質シリカ	-0.20	
C	4.098E-02	491.76	菱鉄鉱	0.00	
S	6.250E-06	0.20	黄鉄鉱	0.00	
F	1.053E-05	0.20			
Fe	1.524E-05	0.85	1) 電荷バランスは Cl で調整した		
Si	1.141E-03	32.05	2) N に関しては幌延実測地下水中の主要成分は NH ₄ ⁺ であるため、計算にあたり溶存化学種として N ₂ は考慮していない。		
N	7.777E-03	108.88			
P	1.266E-06	0.04			
Sr	2.967E-05	2.60			
Mn	3.640E-07	0.02			
Al	3.706E-07	0.01			

(ii) 間隙水水質の時空間変化に係わる測定手法の開発、データ取得およびモデル開発

人工バリア中に浸透してきた地下水は、緩衝材やオーバーパック腐食生成物との反応によりその化学的性質が変化し、間隙水水質が形成される。放射性廃棄物を地層処分した後、圧縮ベントナイト中の間隙水水質に時空間変化が生じた場合、放射性核種の溶解度や分配係数も時空間的に変化する可能性があるため、間隙水水質の時空間変化に関わる信頼性のあるデータを取得することは重要である。これまでに、圧縮ベントナイト中間隙水の pH に関しては、間隙水水質形成モデルに基づく推定が行われているが信頼性のある実測値に関する報告は少なく、特に圧縮ベントナイト中での深さ方向で間隙水 pH を測定した例はほとんど存在しない。小田ほか(1999)では、圧縮ベントナイト中に埋め込み可能な発色剤を用いて圧縮ベントナイト中の間隙水 pH を直接測定する手法を開発したが、試験期間が長くなると発色剤を染み込ませたガラスビーズが溶解し、間隙水 pH に影響を与える可能性があることが指摘されていた。そこで、圧縮ベントナイトの深さ方向で間隙水 pH を直接測定するための手法として、圧縮ベントナイト中に pH 試験紙を挟み、pH を測定する手法を検討した(磯貝ほか, 2004)。また、pH 試験紙とともに高吸水性のパットも挟み込み、間隙水を抽出する手法についても検討を行った。

試験は、雰囲気制御グローブボックス中で、直径 40 mm×高さ 20 mm の圧縮ベントナイト充填カラム (Kunigel V1 : 100 %, 乾燥密度 1.6 Mg m⁻³) を試験溶液 (蒸留水 : pH 9 に調整, 人工海水 : pH 9 に調整, 低アルカリ性セメント液 : pH 11 程度) で飽和含水させた後、カラム 2 つを対として、163~732 日間、室温で静置する方法で行われた。試験終了後、pH 試験紙および高吸水性パットをメンブランフィルターによりベントナイトと隔て、プレス機

で 59~78 MPa の圧力で 10 分程度加圧した。加圧後、予め準備していた色見本を用い、pH 試験紙の呈色状態を複数人で確認し、pH を判定した。高吸収性パットについては、サンプル瓶に入れて蒸留水を添加し、パットに染み込んだ元素を溶出させた。この作業を、ベントナイトの押し出し一切断を繰り返しながらベントナイトの端から順に行い、深さ方向での間隙水 pH の判定および間隙水の抽出を行った。

間隙水 pH プロファイルの測定結果を図 3.2-2 に示す。蒸留水および低アルカリ性セメント (HFSC : High Flyash contained Silica fume Cement) 液を用いた試験では、ベントナイト端付近で若干の pH 低下が認められた (蒸留水 : pH=7~8.5, 低アルカリ性セメント液 : pH=7.5~9.5) もの、カラム中央付近ではほぼ一定の値を示した (蒸留水 : pH=8~9, 低アルカリ性セメント液 : pH=8.5~10)。また、時間の経過とともに、ベントナイト端付近の pH 低下部分が内側にシフトしていく傾向が認められた。人工海水を用いた試験では、ベントナイト端付近では、カラム中央付近 (pH=6~7) よりも若干 pH が上昇する (pH=6.5~7) 空間的变化が認められた。また、カラム中央付近では、時間的变化として pH 低下 (pH=6~7→pH=6~6.5) が認められた。

一方、間隙水組成に関しては、抽出された元素濃度が非常に低く、間隙水組成の定量的プロファイルを取得することは困難であった。しかし、間隙水組成に影響を与えていると考えられるベントナイト固相では、元素濃度変化の定量的プロファイルを得ることができ、全岩分析の結果、pH 低下が認められたベントナイト端付近では Ca および S の減少が確認された。これは、ベントナイト中に存在する可溶性塩、方解石、黄鉄鉱などが溶解し、間隙水中の Ca や硫酸イオンが増加したため、濃度差により試験溶液側に拡散したために生じたと推測された。

また今回の試験は、低酸素濃度 ($O_2 \leq 1$ ppm) 条件で行われたが、溶液側の酸化還元状態は黄鉄鉱の安定領域に比べると酸化的条件であり、溶液との接触面近傍でベントナイト中の黄鉄鉱が酸化溶解した可能性が考えられる。そこで、地球化学コード PHREEQC (Parkhurst and Appelo, 1999) を用い、ベントナイト平衡液に対し酸化還元状態を変化させ、黄鉄鉱を酸化溶解させた場合の pH 変化を予察的に調べた。計算に当たっては、蒸留水試験の場合を一例に間隙水水質形成モデル計算結果 (小田・柴田, 1999) を参考にした。予察的な計算の結果、黄鉄鉱の酸化溶解に伴い、間隙水 pH の値はベントナイト平衡液の pH=8.2 に比べ低下し、pH=7.7 程度となった。この値は、溶液との接触面近傍において実測された間

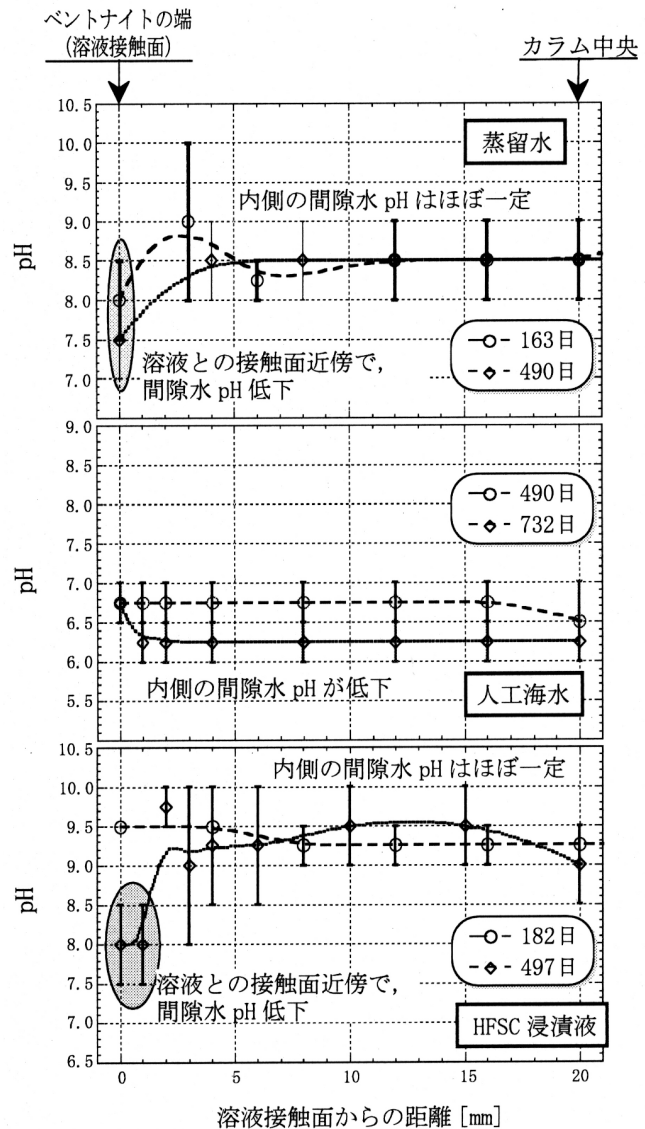


図 3.2-2 間隙水 pH プロファイルの測定結果

隙水 pH の値 (pH=7.0~8.5) を近似しており、間隙水 pH 低下の原因として黄鉄鉱の酸化溶解による影響が示唆された (磯貝ほか, 2004)。

一方、間隙水水質の空間分布に関する天然でのデータ取得として、月布ベントナイト鉱床における河床のボーリング調査も実施した。採取したボーリングコアについて、深度ごとに化学組成分析、X線回折、メチレンブルー吸着量、陽イオン交換容量および層間陽イオンの測定を行い、河床から深部に向けてのベントナイト固相の変化の有無を調査した。また、コアを粉砕し精製水に溶かして得られた懸濁液の pH も測定した (佐治ほか, 2005)。その結果、たとえば河床に近い部分では、コア中の硫酸イオン含有量がより深部に比べて減少する傾向があり、ベントナイト固相の深度方向での変化が確認され、また懸濁液の pH にも深度方向で変化が認められた (図 3.2-3)。このように、天然の事例においても間隙水水質の空間分布に関わるデータを取得できた。

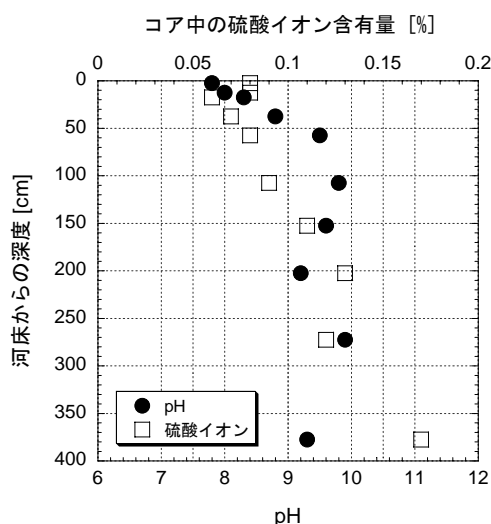


図 3.2-3 コア中の硫酸イオン含有量およびベントナイト懸濁液の pH と河床からの深度との関係

なお、人工バリアに浸入した地下水が緩衝材や腐食生成物と反応することによる間隙水水質の時空間変化を推定するモデル開発の一環として、鉄腐食生成物と緩衝材との相互作用によるスメクタイトの鉄型化に関する予察解析を行い、鉄型化の進展に伴う間隙水中の Fe 濃度や pH 変化の推定も試みた (柴田・陶山, 2003)。

(iii) 高アルカリ条件下での緩衝材の変質に関する鉱物などの熱力学データベースの整備

鉱物などの熱力学データについては、第 2 次取りまとめにおいて、地下水・間隙水水質のモデル化で必要となる重要な鉱物などを選定し、データベースとして整備した (Arthur et al., 1999)。このデータベースには、処分環境でセメント系材料が用いられた場合に想定されるような高アルカリ溶液と緩衝材が反応した場合の生成物や高アルカリ条件下で支配的な化学種についてのデータは含まれていない。そこで、これまでに報じられている室内試験やナチュラルアナログ研究などの結果をもとに、高アルカリ溶液と緩衝材が反応した場合、どのような二次鉱物が生成される可能性があるかを整理した (Arthur et al., 2004)。

文献調査の結果、高アルカリ溶液と緩衝材の反応の進展に伴い、

- a) スメクタイトの層構造の部分的変化やアモルファス化
- b) 混合層中でのスメクタイトの選択的な溶解やそれに伴う異なるタイプのスメクタイト (バイデライト, サポナイトなど) の生成
- c) イライトの生成

- d) 沸石（フィリップサイトやアナルサイムなど）の沈殿
 e) カリ長石や石英の沈殿

の順に二次鉱物に変化し、これらのいずれの段階においても、炭酸塩鉱物、CSH (calcium-silicate-hydrates)・CASH (calcium-aluminum-silicate-hydrates) ゲルや Ca-Mg 水酸化物の沈殿・溶解が生ずることがわかった。ただし、実験などで認められた生成物の多くは、非晶質、低結晶度の固相であり、これらの固相に対する熱力学データは不確実性が大きい。またこのような準安定相は、時間の経過とともに結晶度の高い安定な固相へと変遷していくと考えられるが、安定な固相の多くは複雑な組成を持つ固溶体であり、実験的に求められた熱力学データの数も乏しい。したがって、実験データをもとに導出された熱力学的特性のみで、高アルカリ条件下での緩衝材の変質に関する鉱物などの熱力学データを整備するのは現状では困難である。このような現状を踏まえると、高アルカリ条件下での緩衝材変質鉱物の熱力学データ整備にあたっては、鉱物の構造や組成に基づき計算により熱力学データを算出する経験的な手法（たとえば、Mattigod and McGrail, 1999）も併用し、データ整備を行うことが必要である。そこで、高アルカリ条件下での評価上重要となる沸石類については、信頼できる実験値が無い場合、このような経験的な手法により熱力学データの算出を試みる（表 3.2-2）とともに、導出された鉱物の熱力学データの信頼性について、室内試験やナチュラアナログ研究などの結果との比較をもとに検討を進めた。なおデータ整備は、処分環境と類似した条件で生成した沸石類の代表的な組成や端成分に対して行っており、混合層については考慮していない。整備された熱力学データベース（以下、「JNC-TDB.TRU」という）の詳細については Arthur et al. (2005) にまとめられている。ここでは、本データベースの開発方針および手順について述べる。

表 3.2-2 Mattigod and McGrail (1999) の手法により導出された沸石類のギブス生成自由エネルギーの値
 （鉱物名に付随する a, b は組成の違いを表すために便宜的につけた）

Mineral Name	Composition	ΔG_f°
		[cal mol ⁻¹]
Clinoptilolite_a	(K _{2.3} Na _{1.7} Ca _{1.4})Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂ ·26H ₂ O	-9,319,096
Clinoptilolite_b	(K _{0.8} Na _{0.4} Ca _{2.8})Al _{6.8} Si _{29.2} O ₇₂ ·26H ₂ O	-9,322,131
Mordenite	(K _{0.9} Na _{2.1} Ca _{1.5})Al ₆ Si ₃₀ O ₇₂ ·22H ₂ O	-9,024,540
Erionite_a	(K _{2.8} Na _{3.4} Ca _{0.8})Al _{7.8} Si _{28.2} O ₇₂ ·30H ₂ O	-9,616,137
Erionite_b	(K ₃ Na _{1.2} Ca ₂)Al _{8.2} Si _{27.8} O ₇₂ ·30H ₂ O	-9,659,207
Chabazite_a	(K _{0.9} Na _{4.9} Ca _{0.8})Al _{7.4} Si _{28.6} O ₇₂ ·36H ₂ O	-9,912,271
Chabazite_b	(K ₂ Na _{3.7} Ca _{1.2})Al _{8.1} Si _{27.9} O ₇₂ ·36H ₂ O	-9,975,776
Heulandite	(K _{0.4} NaCa _{3.3})Al ₈ Si ₂₈ O ₇₂ ·26H ₂ O	-9,411,282
Epistilbite	CaAl ₂ Si ₆ O ₁₆ ·5H ₂ O	-2,065,548

図 3.2-4 に JNC-TDB.TRU の開発フローを示す。2.1 節で述べられているように第 2 次取りまとめにおいては、放射性元素の熱力学データベース (JNC-TDB: Yui et al., 1999) と地球化学元素の熱力学データベース (SPRONS.JNC: Arthur et al., 1999) が各々独自に開発された。本検討で高アルカリ条件下での緩衝材変質に関する鉱物などの熱力学データベースを整備するにあたっては、両データベースの統合を図ることを試みた。その一環として、緩衝材変質鉱物などの溶解反応式を記述する上で必要となる化学種 (H₂O₀, Ca²⁺, Mg²⁺, Na⁺, K⁺, Al³⁺, SiO_{2(aq)}, Cl⁻, CO₃²⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻, F⁻, HPO₄²⁻) について、それぞれのデータベースにおけるギブス自由エネルギー (ΔG_f°), エンタルピー (ΔH_f°), エントロピー (S⁰) を比較し、両データベース間における差異を把握し、統合の可能性について検討した。その結果、HPO₄²⁻を除く化学種の熱力学データは、それぞれの化学種のそれに対する誤差範囲内でほぼ整合していた。したがって、緩衝材変質鉱物などの反応の平衡定数 (logK) を追加するにあたり、P を含む鉱物である hydroxyapatite を除けば、いずれのデータベースを用いても

大きな違いは生じず、両データベースを統合できる可能性が示された。そこで、JNC-TDB.TRUの開発にあたっては、安全評価に不可欠な放射性元素の生成・解離反応式などのlogKを含むJNC-TDBに対して、それぞれ以下のような手順で緩衝材変質鉱物などの反応のlogKを追加した。

- ・ 沸石類やセメント系鉱物のlogKについては、熱力学データからlogKを算出するSUPCRTプログラム(Johnson et al., 1992)を利用するため、文献調査や経験的計算手法により導出した熱力学データを一旦SPRONS.JNCに取込んだ(SPRONS.TRU)。その後、SUPCRTプログラムとSPRONS.TRUを用い、logKを算出し、JNC-TDBに追加した。
- ・ 高アルカリ溶液と緩衝材の反応で重要となる粘土鉱物などのlogKについては、地球化学の分野で幅広く用いられ、データの信頼性評価も行われているSPRONS.JNCのデータをJNC-TDBに追加した。
- ・ 一方、hydroxyapatiteのlogKについては、先述したようにHPO₄²⁻のデータにデータベース間での違いがあることから、上記のSUPCRTプログラムを使う手順ではなく、JNC-TDBのデータを用い、手計算で導出した上でJNC-TDBに追加した。

以上のような手順にもとづき作成されたJNC-TDB.TRUは、JNC-TDBと同様に地球化学コードPHREEQE(Parkhurst et al., 1980)のデータベースフォーマットで整備するとともに、データベース変換プログラム(吉田・油井, 2003)を用い、PHREEQCやGWB用のデータベースフォーマット(THERMO_JNCTRU)でも整備した。なお、TRU廃棄物処分研究においては、高アルカリ溶液と緩衝材の反応の進展に伴い生ずる二次鉱物に関する情報をもとに、緩衝材構成鉱物の鉱物学的な長期変遷シナリオを作成し(小田ほか, 2005)、人工バリア領域での物質移行・化学反応解析を行っており、解析には上記のデータベースが用いられている(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005)。

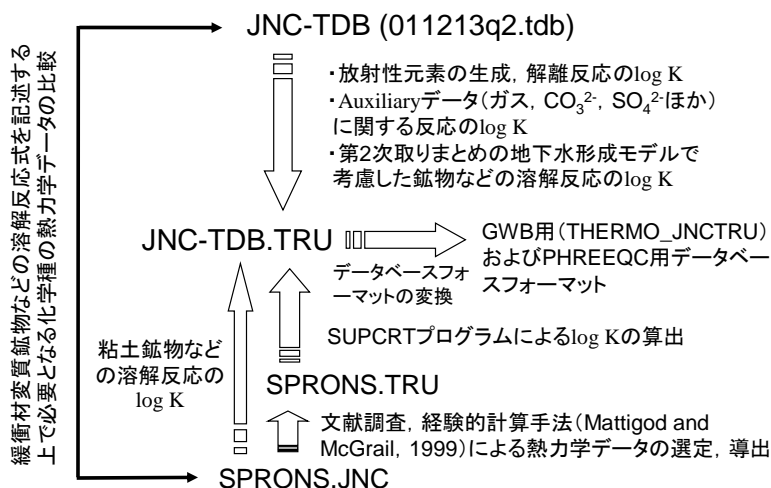


図 3.2-4 JNC-TDB.TRUの開発フロー

(3) 結論

地下水に関しては、地表からの調査段階における地下水データの信頼性評価手法や採水後に地表で測定された地下水データに基づく深部地下水水質の推定手法について、実際の地質環境を対象とした検討例を示した。間隙水に関しては、圧縮ベントナイト中間隙水水質の時

空間変化を把握するための手法開発を進め、室内でのカラム試験における間隙水 pH の時空間変化を直接測定することが可能になった。また天然のベントナイト鉱床における間隙水水質の空間分布に関わるデータも取得した。鉱物などの熱力学データベースに関しては、処分環境でセメント系材料が用いられた場合に想定されるような高アルカリ溶液とベントナイトが反応した場合の生成物や高アルカリ条件での支配的な化学種についての熱力学データを収集し、データベースを開発した。

(4) 今後の課題

地下水に関しては、幌延の深地層の研究施設計画での調査研究と連携し、本研究で例示した手法による深部地下水水質の推定結果と原位置における信頼性のある測定結果との比較を行い、評価・推定方法の妥当性について検討を進めていくことが必要である。また、坑道掘削段階以降で得られたデータに基づき、地表からの調査段階における地下深部の水質評価手法の妥当性について検証することも重要である。さらに、各調査段階における地下水データの評価、水質形成機構の理解、水質分布の把握などにおける地下水水質形成モデルの役割や重要性についても、今後整理していく必要がある。間隙水に関しては、精度の高い間隙水水質の時空間変化に関するデータ取得のため、酸化還元状態に影響を受けない試験系でのデータ取得方法について検討を進めるとともに、室内試験・天然事例による間隙水水質の時空間変化に関わる現象解明を進めモデルを開発していくことも必要である。高アルカリ条件での鉱物などの熱力学データベース開発では、選定された熱力学データの信頼性について、関連する実験や天然事例をもとに検証を進めることが重要である。

3.3 現象論的核種移行モデルの開発

3.3.1 ガラスの長期浸出挙動に関する研究

(1) はじめに

ガラス固化体は放射性核種の放出を抑制する第1番目のバリアとして機能し、第2次取りまとめの安全評価においては、ガラス固化体の浸出挙動を長期的な試験から得られた浸出速度を用いて評価した。ホウケイ酸ガラスを主成分とするガラス固化体は、種々の元素を含有する多成分ガラスであり、その浸出挙動は種々の反応を取り得る。これまでに、ガラスマトリックスの浸出およびガラス固化体近傍の溶存ケイ酸濃度との関係などに関して多くの報告がある (Grambow, 1985 ; Grambow et al., 1992 ; Curti et al., 1993 ; 牧野・吉田, 1996)。また、ガラスの浸出に関する諸研究をレビューした報告がなされている (稲垣ほか, 2004)。

ガラス固化体は長期の処分期間に地下水との反応によって浸出するとともに、より安定な鉱物に変質 (鉱物化) していくことがナチュラルアナログ研究により明らかになっている。ガラス固化体の長期浸出/変質挙動は、第2次取りまとめで述べた一次溶解モデルでの評価のみならず、長期的評価として、変質/鉱物化に関連した拡散過程に律速された浸出速度の評価が必要である。しかしながら、これらの挙動は環境条件に大きく依存し、反応機構の十分な現象理解には至っていない。

一方、ガラスの浸出と核種の浸出に関しては、処分地が持つ条件を適切に考慮した評価モデル及びパラメータの設定を行うこと (原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会, 2000) や、最新の知見を反映させたモデル及びデータの設定を行うこと (原子力発電環境整備機構, 2004) が求められている。ガラス固化体からの核種浸出に対する長期的なバリア性能の評価の信頼性を向上させるために、ガラスの浸出、変質・鉱物化、浸出した核種の表面変質層への収着現象などの地球化学的反応機構を明らかにし、これらの反応を相互的かつ総合的に理解することが重要であると考えられる。

以上のような課題を踏まえ、ガラス固化体からの核種の長期浸出挙動の現象理解とそのモデル化を目的として、以下のように研究課題を設定した。なお、ここで紹介する成果のうち (i) と (ii) は九州大学と共同で実施したものである (稲垣, 2002, 2003, 2004, 2005)。

- (i) ガラス浸出試験, 表面変質層の特性評価およびモデル化
- (ii) 表面変質層-核種相互作用データ取得
- (iii) 地下深部の環境におけるガラス変質評価 (ナチュラルアナログ研究)

(2) 研究内容

(i) ガラス浸出試験, 表面変質層の特性評価およびモデル化

(a) アルカリ条件下でのガラス浸出試験

表面変質層の形成・鉱物化現象と、浸出挙動へ与える影響を実験的、解析的に明らかにすることを目的として模擬ガラス固化体 (P0798 ガラス) を蒸留水やアルカリ性溶液、ベントナイト平衡液と接触、反応させる浸出試験を行った。

pH や Na 濃度をパラメータとした浸出試験を実施し、最長約 200 日間の浸出試験結果から、変質鉱物としてスメクタイト、方沸石の生成が確認された。図 3.3.1-1 に鉱物化を起こしているガラスの電子顕微鏡観察結果を示した (Area 1 がスメクタイト, Area 2 が方沸石)。P0798 ガラスはアルカリ水溶液および脱イオン水との反応によりガラス表面に変質鉱物が生成する。主な生成鉱物は、pH11 以上の条件では方沸石 (analcime : $\text{NaAlSi}_2\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O}$)、pH11 以下ではスメクタイト (Na-beidellite : $\text{Na}_{0.33}\text{Al}_2(\text{Si}_{3.16}\text{Al}_{0.33})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$) であり、また、同時に非晶質シリカ ($\text{SiO}_2(\text{am})$) やゲル相も生成する (稲垣, 2003 ; Inagaki et al., 2002) 。

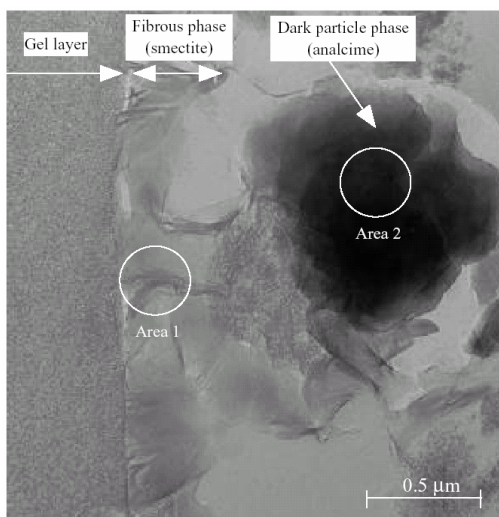


図 3.3.1-1 ガラスの鉱物化の様子

(b) 表面変質層の特性評価（浸出速度）

pH11 以上では方沸石の生成によりガラス浸出／変質は加速され、一方、pH11 以下のスメクタイトが生成する条件では、スメクタイトの生成の有無に拘らずガラス浸出／変質速度は遅いことが試験から分かった。生成鉱物とガラス浸出速度の関係を表 3.3.1-1 に整理した。

表 3.3.1-1 生成鉱物とガラス浸出速度（Bに基づく浸出速度）の関係

実験条件 (反応溶液, 温度)	溶液pH 初期～安定	主な生成鉱物	ガラス浸出速度 (Bに基づく浸出速度)
0.1M NaOH, 90～150℃	13～12	Analcime, Smectite	非常に速い
0.03M NaOH, 90～150℃	12.5～11	Smectite, Analcime	速い
0.001M NaOH, 60～120℃	10.8～9.5	Smectite	遅い
DIW, 90～150℃	5.7～10	Smectite	遅い
0.1M KOH, 120℃	13～12	Not detected	遅い

スメクタイト生成条件でのガラス浸出／変質速度は、後述するガラス中への水 (H_3O^+ : hydronium ion) の拡散をもとにした水和変質モデルを用いて良く説明できることから、この水の拡散がガラス浸出／変質の律速過程になると考えられる。水和変質モデルによる解析において、水の拡散係数 D_i は $10^{-22} \sim 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (温度60～120 °C) となり、その温度依存性から活性化エネルギーは約50 kJ mol⁻¹となる。浸出／変質が進行するにつれて、この拡散係数の値は見かけ上小さくなる。これはガラス表面に鉱物（スメクタイト）を含む析出層が成長し、拡散を抑制するためと考えられる。

(c) ベントナイト共存の影響

ベントナイトを共存させたベントナイト平衡水中において、ガラスの浸出試験を実施した。その結果、温度 120 °C、最長 140 日間の試験結果では、粉末 X 線回折で検出可能な結晶性鉱物の生成を伴うようなガラス表面変質は見られなかった。ベントナイトを共存させた場合の B と Cs の浸出試験結果をベントナイトを共存させない場合の結果とともに規格化浸出量 (NL_i) として図 3.3.1-2 に示した。ベントナイト共存では B 浸出量はいくらか増加するが、実線で示す水和変質モデルによる解析結果と良く一致することから、ベントナイト共存下においてもガラス固体の浸出／変質は水の拡散に律速されて進行すると考えて説明できることが分かった。

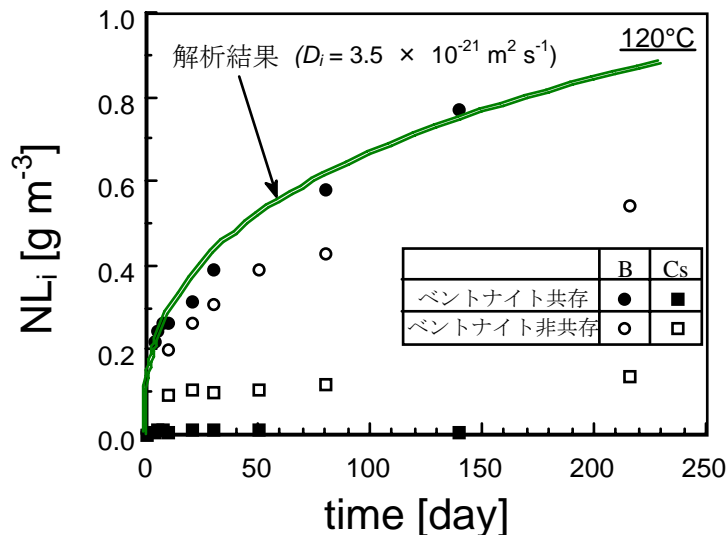


図 3.3.1-2 ベントナイト共存の有無におけるガラスからの B と Cs の浸出試験結果

(d) 水和変質モデル

ガラス固化体の浸出／変質速度については、近年いくつかの現象解析モデルが提案されてきており、安全評価の信頼性向上の観点から、これらのモデルを十分な科学的理解のもとに最終的なガラス固化体の評価モデル（元素／核種の浸出モデル）に取込んでいくことが必要である。ここでは、本研究を含むこれまでの研究成果から、ガラス固化体の長期挙動を支配すると判断される拡散現象として「水和変質」に着目し、稲垣により開発された水和変質モデル（Inagaki, 1994；稲垣, 2004, 2005）（図 3.3.1-3）を用いて解析した結果を以下に示す。

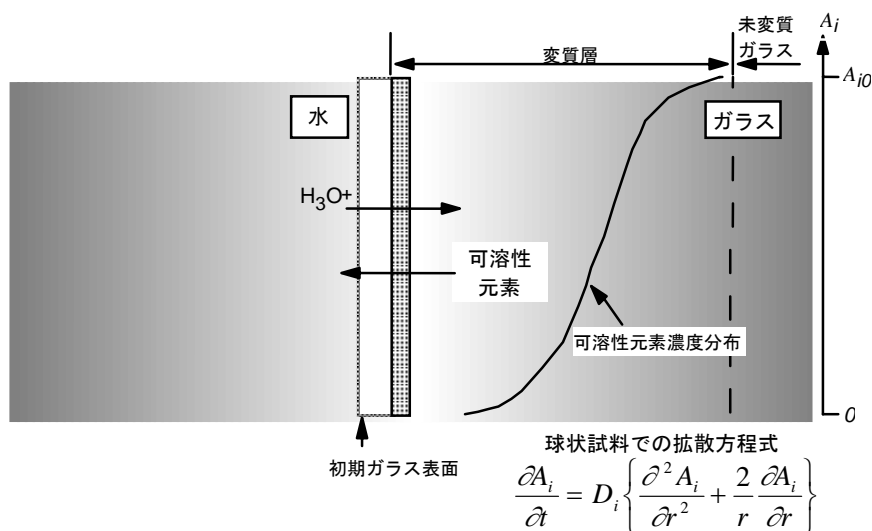


図 3.3.1-3 水和変質モデルの概略

水和変質反応では、ガラス中の可溶性元素が水（ H_3O^+ : hydronium ion）とのイオン交換によってガラスマトリクス中を拡散し浸出する。その拡散係数を D_i とし、ガラス形状を球とした場合、水和変質反応は(3.3.1-1)式に示す拡散方程式を用いて表すことができる。なお、ここでは変質層の進展に伴う未変質ガラスとの界面の移動は考慮しない。

$$\frac{\partial A_i}{\partial t} = D_i \left\{ \frac{\partial^2 A_i}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial A_i}{\partial r} \right\} \quad (3.3.1-1)$$

ここで、

A_i : ガラス中の元素 i の濃度

t : 拡散時間

r : 球状試料の半径上の位置

D_i : 元素 i の拡散係数

いま、溶存ケイ酸飽和溶液中での反応を考えると、ガラスマトリクスであるケイ酸のさらなる浸出は起こらないため固液界面の位置は不変であると仮定できる。また、 $t=0$ においてガラス中 i 元素濃度分布が均一とすれば、ガラス試料半径を a として境界条件、初期条件は以下のようになる。

$$\left. \begin{array}{l} A_i(a, t) = 0, \quad t > 0 \\ A_i(r, 0) = A_{i0}, \quad 0 < r < a \end{array} \right\} \quad (3.3.1-2)$$

ここで

a : 球状試料の半径

A_{i0} : ガラス中の元素 i の初期濃度

これらの境界条件、初期条件の基に拡散方程式(3.3.1-1)式を解くと、その解析解は以下の(3.3.1-3)式のように求められる。

$$\frac{M_{i,diff}(t)}{M_{i,total}} = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left\{-\frac{D_i n^2 \pi^2 t}{a^2}\right\} \quad (3.3.1-3)$$

ここで

$M_{i,diff}(t)$: 拡散時間 t で浸出した元素 i の量

$M_{i,total}$: 拡散時間 t が無限大の時の浸出した元素 i の量、ガラス中の初期の元素 i の量と等しい

この最終的な解は一般的な形、すなわち浸出割合(時間 t までに浸出した元素 i の量 $M_{i,diff}(t)$ / ガラス中の初期の元素 i の量 $M_{i,total}$) として表される。また、 $M_{i,diff}(t)$ は時間 t までに水和変質した量と見なすこともできる。

このような整理を踏まえて、ガラス固化体の長期浸出挙動について、現象論的検討として水和変質モデルを考慮した。次に、この水和変質モデルの可溶性元素の浸出モデルへの適用を考える。Bなどの可溶性元素 i の浸出量 M_i は、ガラスマトリクスとの調和溶解による浸出量 $M_{i,matrix}$ と水和変質による浸出量 $M_{i,diff}$ の和として表される。

$$M_i = M_{i,matrix} + M_{i,diff} \quad (3.3.1-4)$$

ここで、 $M_{i,diff}$ を先の(3.3.1-3)式を用いて表すと、可溶性元素 i の浸出量 M_i は以下のように表される。

$$M_i = M_{i,matrix} + M_{i,total} \left\{ 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left\{ -\frac{D_i n^2 \pi^2 t}{a^2} \right\} \right\} \quad (3.3.1-5)$$

(3.3.1-5)式においてパラメータは a 、 D_i 、 $M_{i,matrix}$ であるが、本実験系では $M_{i,matrix}$ は試験結果からSiの飽和浸出量($NC_{Si} \sim 400 \text{ g m}^{-3}$)と見なし、また、ガラス試料を等価な球の集合と仮定して比表面積測定値($0.49 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$)から $a=2.23 \mu\text{m}$ と見なした。従って、パラメータは D_i のみとなり、各元素の浸出量を解析し、各温度における D_i の値を求めることができる。本研究では、このようにして求めた D_i の値は $10^{-22} \sim 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (温度 $60 \sim 120 \text{ }^\circ\text{C}$)となり、その温度依存性から活性化エネルギーは約 50 kJ mol^{-1} となった。

(ii) 表面変質層－核種相互作用データ取得

(a) Csの浸出挙動

図 3.3.1-2 に示した Cs の浸出試験結果でも分かるように、ベントナイト非共存では、Cs の浸出量は B の浸出量の 1/4 程度と小さい。アルカリ金属元素である Cs は水中で Cs^+ として溶解する可溶性元素である。しかしながら、ガラスから浸出した Cs はガラス表面の変質層中に何らかの機構で固定化されているためと考えられる。そこで、その固定化機構を評価するために、変質後のガラスからの Cs の脱離試験を行った。Cs 脱離試験に用いたガラス試料は、pH の異なる条件で浸出試験を行った 2 種類の変質後のガラスであり、ひとつは主にスメクタイトの生成が確認されているガラス、他方は主に方沸石の生成が確認されているガラスである。また、脱離液としては 0.1 M NaCl 水溶液を用いた。Cs が生成鉱物にイオン交換による収着によって固定化されているのであれば、この脱離液で Cs は脱離されることになる。脱離条件を表 3.3.1-2 に示す。脱離試験後、脱離液とガラス試料を分離し、脱離液は ICP-MS を用いて Cs 濃度を測定した。一方、ガラス試料は再度新たな脱離液に浸漬して Cs を脱離させ、同一のガラス試料について計 4 回の脱離試験を行った。

Cs 脱離試験の結果、主にスメクタイトの生成が確認されている変質後ガラスでは脱離 4 回における脱離割合(規格化浸出量に換算した Cs 脱離量と B 規格化浸出量の比)が 0.6 となり、ガラスから浸出した Cs の多くはガラス表面変質層中にイオン交換による収着によって固定化されていることがわかる。一方、主に方沸石の生成が確認されている変質後ガラスでは脱離 4 回における脱離割合が 0.1 となり、イオン交換による収着よりも強い結合によって固定化されていることがわかる。

表 3.3.1-2 変質後ガラスからのCsの脱離試験条件

ガラス試料	変質後ガラス (P0798 ガラス) 1. 主にスメクタイトの生成を確認した変質後ガラス 浸出試験条件: 蒸留水中 $120 \text{ }^\circ\text{C}$ で 90 日 2. 主に方沸石の生成を確認した変質後ガラス 浸出試験条件: $0.1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ NaOH}$ 中, $120 \text{ }^\circ\text{C}$ で 90 日
脱離液	$0.1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ NaCl}$
固液比	ガラス試料 0.1 g / 脱離液 20 mg
脱離温度	$90 \text{ }^\circ\text{C}$
脱離時間/回数	1 日/回 計 4 回 (脱離試験後のガラス試料は、新たな脱離液を用いて再度脱離し、計 4 回の脱離試験を行った。)

以上の結果よりガラス固化体からの Cs の浸出挙動を次のように評価できる。まず、Cs は B などの可溶性元素と同じようにガラスから浸出するが、浸出した Cs の多くはガラス表面変質層中の生成鉱物に固定化されて溶液中にイオンとして溶存する量は少ない。生成鉱物としてスメクタイトが生成される条件では、浸出した Cs はスメクタイトにイオン交換による収着によって固定化され、一方、生成鉱物として方沸石が生成される条件では、浸出した Cs は方沸石生成時に構成元素である Na と一部置換して強く固定化されるものと考えられる。方沸石 ($\text{NaAlSi}_2\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O}$) の構成元素である Na を Cs で置換した鉱物はポルサイト (pollucite : $(\text{Na,Cs})\text{AlSi}_2\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O}$) と呼ばれ、方沸石と広く固溶できる鉱物である。

ベントナイト共存の場合については、実験後のベントナイトからの Cs 脱離試験を同様の手順で行い、脱離割合が 0.9 以上となることから、浸出した Cs のほとんどがイオン交換によりベントナイトに収着されていることが分かった。これらのことから、Cs は B などの可溶性元素と同じようにガラスから浸出し、ベントナイト非共存の場合は、その多くはガラス表面変質層に生成するスメクタイトのイオン交換による収着によって固定化されるのに対し、ベントナイト共存下においては、Cs は B などの可溶性元素と同様にガラスから浸出した後、その多くはベントナイト (Na モンモリロナイト) のイオン交換による収着によって固定化されることが分かった。

(b) 長期浸出挙動評価

ガラス固化体の長期浸出挙動の現象論的な検討として、製造時の冷却過程、あるいはオーバーパック破損時に受ける腐食膨張圧や静水圧などを受けた時の歪みの影響で生じる割れとの関係に着目すると、初期の段階から生じ得る亀裂が閉じているような状態でのガラス浸出挙動、および長期間経過後にガラス浸出が進み亀裂が開いた状態となった場合でのガラス浸出挙動のそれぞれについて解析的な検討が考えられる。本項では、亀裂が開いた状態での挙動を、ガラス表面の変質層の存在を含めて検討する。一方、亀裂が閉じた状態についての検討を 4.2 節で述べる。

水和変質モデルを用いてガラス固化体の長期浸出挙動の解析を行った。まず、球状に仮定したガラス固化体の幾何学的形状については以下のように考察した。ガラス固化体は、輸送、定置、処分時の機械的/熱的衝撃により割れが発生し、幾何学的形状および表面積が変化する。第 2 次取りまとめでは、ガラス固化体の初期形状を直径 430 mm、高さ 1,340 mm の円柱状とし、その表面積が割れにより初期の 10 倍に増加すると仮定しているが、割れ発生後の幾何学的形状には言及していない。拡散方程式を用いた水和変質モデルおよびそれに基づく元素の浸出モデルでは、試料の幾何学的形状についても設定する必要があるため、次のように設定した。割れ発生後のガラス固化体の幾何学的形状は、その安定性および拡散方程式の取扱い易さから、球の集合と仮定することが最も合理的である。以下に、初期の円柱状ガラスが割れにより半径 a の n 個の等価な球になる場合を考える。

- ・割れの前後でガラス全体積が不変とすれば、

$$\frac{4}{3} \pi a^3 n = \pi a_0^2 h \quad (3.3.1-6)$$

ここで、 a_0 は初期円柱状ガラスの半径 (= 215 mm)、 h は初期円柱状ガラスの高さ (= 1,340 mm) を示す。

- ・割れにより表面積が x 倍になるとすれば、

$$4 \pi a^2 n = x (2 \pi a_0^2 + 2 \pi a_0 h) \quad (3.3.1-7)$$

- ・上記 2 つの式より、 a 、 n 、 x の関係は、

$$a = \frac{3a_0h}{2x(2a_0 + h)} \quad (3.3.1-8)$$

$$n = \frac{3}{4} \frac{a_0^2 h}{a^3} \quad (3.3.1-9)$$

ここで、 $a_0 = 215 \text{ mm}$ 、 $h = 1,340 \text{ mm}$ の初期円柱状ガラスが割れて半径 a の n 個の等価な球になるとし、その表面積が 10 倍、100 倍、1,000 倍 ($x = 10, 100, 1,000$) になる場合を想定し、 a および n として次の値を設定した。

$$a = 24.4 \text{ mm}, 2.44 \text{ mm}, 0.244 \text{ mm}$$

$$n = 3.2 \times 10^3 \text{ 個}, 3.2 \times 10^6 \text{ 個}, 3.2 \times 10^9 \text{ 個}$$

次に、可溶性元素または水 (H_3O^+ : hydronium ion) の拡散係数である D_i は、これまでの試験結果より温度 $60 \sim 120 \text{ }^\circ\text{C}$ では $10^{-22} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ から $10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の範囲にあると判断され、その値を考慮し保守的に以下の 3 通りを設定した。

$$D_i = D_{\text{H}_2\text{O}} = 10^{-22} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}, 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}, 10^{-20} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$$

次に、ガラスマトリクスとの調和溶解による浸出量 $M_{i, \text{matrix}}$ は、ガラス固化体が置かれる環境の溶存 Si 濃度、pH、温度などに依存するため、ここでは溶存 Si 濃度が飽和にありガラスマトリクスとの調和溶解が進行しない条件を仮定し (第 2 次取りまとめでは、溶存 Si 濃度飽和条件での浸出速度を仮定)、 $M_{i, \text{matrix}} = 0$ と設定した。

以上の条件設定をもとに、浸出モデルを用いて可溶性元素浸出量を浸出割合 ($M_i / M_{i, \text{total}}$) として評価し、これがガラス固化体の浸出量と等しいとしてガラス固化体の長期浸出挙動を検討した。評価結果を第 2 次取りまとめでの評価結果 (ガラス固化体の幾何学的表面積の 10 倍が浸出に寄与し、一定速度 ($1 \times 10^{-3} \text{ g m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) で浸出と仮定) とともに図 3.3.1-4 に示す。まず、図 3.3.1-4 (a) では、ガラス固化体の幾何学的形状として割れ後のガラス半径を一定値 $a = 2.44 \text{ mm}$ (割れによる表面積増加倍率 $x=100$) と仮定し、拡散係数を $D_i = 10^{-22} \sim 10^{-20} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ の範囲で変化させた場合を評価した。この場合、浸出割合は拡散係数の増加とともに増加するが、いずれの拡散係数においても反応時間 10 万年における浸出割合は 40 % 以下になった。

次に、図 3.3.1-4 (b) では、拡散係数を一定値 $D_i = 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ と仮定し、ガラス固化体の幾何学的形状として割れ発生後のガラス半径を $a = 0.244 \sim 24.4 \text{ mm}$ (割れによる表面積増加倍率 $x=1,000 \sim 10$) の範囲で変化させた場合を評価した。この場合、浸出割合はガラス半径 a の減少とともに増加し、ガラス半径 a の変化は拡散係数の変化よりも大きな影響を及ぼすことが分かる。以上のように、拡散方程式を用いた水和変質モデルを適用した解析では、核種保持期間は解析パラメータの大きな影響を受け、特に割れによるガラスの幾何学的形状の変化 (サイズの減少、表面積の増加) の影響が大きいことがわかる。

以上のことから、今回の拡散方程式を用いた水和変質モデルの適用により、ガラス固化体の全量浸出には非常に長い時間がかかると評価された。このことは、第 2 次取りまとめにおいてガラス固化体が約 7 万年で全量浸出するとしたことに対して、ガラス固化体により長い耐久性を期待できる可能性が示された。

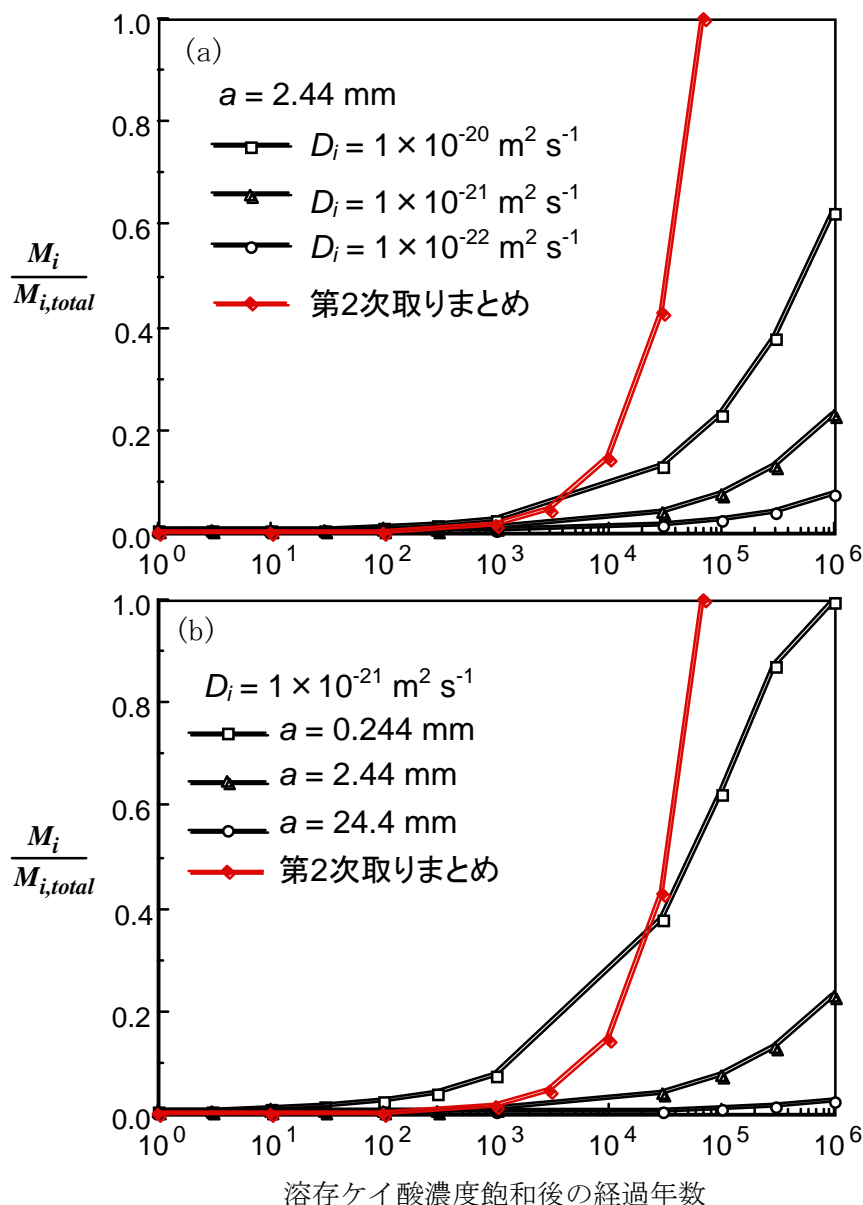


図 3.3.1-4 水和変質モデルによるガラス固化体長期浸出挙動の評価結果

(iii) 地下深部の環境におけるガラス変質評価（ナチュラルアナログ研究）

わが国における地中でのガラス質の岩石（凝灰岩類）の埋没続成作用の研究として、石油開発に伴う基礎ボーリング孔での自生鉱物の生成条件の検討、たとえばガラスの沸石化の検討などが多角的に実施されている（佐々木，1990；Iijima，1991）。深層ボーリングでは続成作用による次のようなガラスの段階的沸石化が報告されている（Iijima and Utada，1971；飯島 1978）。

ガラス→斜プチロル沸石やモルデン沸石→方沸石→曹長石

pH8～10においてはこのように珪長質ガラスの累進的な沸石～長石化が存在し、埋没深度、すなわち地温と各変質段階に関係があることが示されている。また、佐々木（1990）は、わが国の主要な油田地域の基礎ボーリング試料の研究から、わが国の油田地域の海成層における沸石化作用について、有効被熱時間の概念を導入してガラスの沸石化を議論している。

本研究では、これらの油田地域での埋没続成作用の研究成果を参考にして、地下の温度、

埋没時間、地下水組成と火山ガラスの変質の関係に着目し、南関東の地下深部のボーリングコアを用いた調査を実施した。調査はガラスの変質状況および変質環境条件（温度履歴や水質情報など）について実施した（Yoshikawa et al., 2005）。

コアは、神奈川県横浜市旭区川井宿に掘削された孔口標高 61.6 m、深度 2,045.0 m のボーリング孔（以下、「横浜孔」という）より採取されたコアを用いた。深度 10～1,370 m が更新世～鮮新世の上総層群、深度 1,370 m 以深が鮮新世～中新世の三浦層群となっている。なお上総層群および三浦層群はいずれも海成層である。温度検層結果によれば、孔底で約 70 °C である。

また、横浜孔から約 2 km 程度の距離に深度 1,500 m の温泉ボーリングが存在し、同地下水組成（表 3.3.1-3）を試料採取地点周辺の深部地下水の化学組成を代表する値として採用した。深度約 2,000 m のボーリングコアの変質に関与した地下水は Na-Cl 型の地下水組成であることが推定される。

得られた試料について、粉末 X 線回折による鉱物分析および偏光顕微鏡観察を実施した。深度 1,003.47～1,003.53 m の試料と、深度 2,000.12～2,000.18 m の試料の偏光顕微鏡による薄片写真を図 3.3.1-5 に示す。

表 3.3.1-3 試料採取地点周囲の地下水の分析値

組成 \ 試料名	周囲の地下水 GL -1,500 m
pH	7.8
Eh [mV]	—
EC [mS m^{-1}]	1,460.0
Na^+ [mg dm^{-3}]	2,820
K^+ [mg dm^{-3}]	64
Ca^{2+} [mg dm^{-3}]	160
Mg^{2+} [mg dm^{-3}]	35
total cations [meq dm^{-3}]	135.16
HCO_3^- [mg dm^{-3}]	310
SO_4^{2-} [mg dm^{-3}]	<1
Cl^- [mg dm^{-3}]	4,900
total anions [meq dm^{-3}]	143.30
I_2 [mg dm^{-3}]	<1
Br [mg dm^{-3}]	18
SiO_2 [mg dm^{-3}]	76
H_2BO_3 [mg dm^{-3}]	120
TOC [mg dm^{-3}]	7
δD [‰]	-5.2
$\delta^{18}\text{O}$ [‰]	-32.1

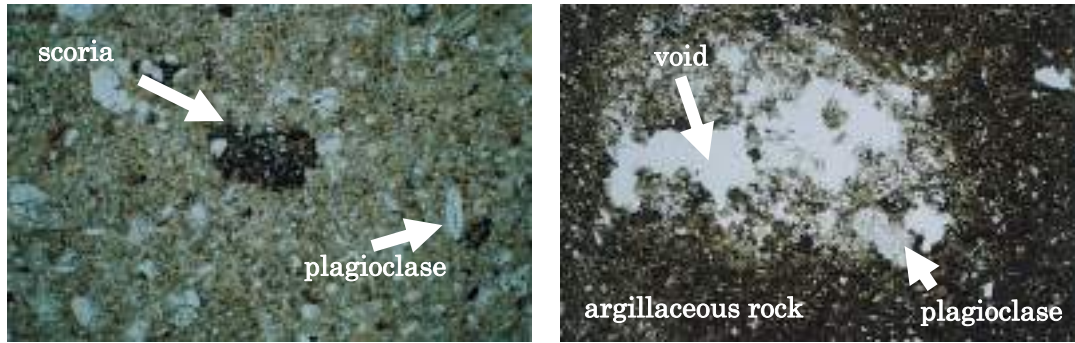


図 3.3.1-5 偏光顕微鏡像

(左 : 深度 1,003.47~1,003.53 m, 右 : 2,000.12~2,000.18 m)

ボーリングコア中に見出された鉱物を表 3.3.1-4 にまとめた。深度 1,003.47~1,003.53 m の試料では、ガラスの変質は認められなかったが、深度 2,000.12~2,000.18 m の試料では、変質鉱物として斜プチロル沸石やモンモリロナイトが生成していることが分かった。

表 3.3.1-4 ボーリングコア試料の鉱物組成

	深度 [m]	モンモリロナイト							概略推定温度 [°C]	ガラス残存率 [%]
		緑泥石								
		イライト								
		石英								
		斜長石								
		斜プチロル沸石								
		普通角閃石								
横浜孔	1,003.47-1,003.53 m						▲		43	100
	2,000.12-2,000.18 m	▲					○	Tr	70	0
	2,006.34-2,006.37 m	Tr	Tr	Tr	◎	○	▲		70	0

◎:多量 ○:中程度の量 ▲:少量 Tr:微量

(3) 結論

(i) 現象理解のためのガラス浸出試験, 表面変質層の特性評価およびモデル化

- ・ P0798 ガラスはアルカリ水溶液および脱イオン水との反応により鉱物に変質する。主な生成鉱物は、pH11 以上の条件では方沸石 (analcime : $\text{NaAlSi}_2\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O}$)、pH11 以下ではスメクタイト (Na-beidellite : $\text{Na}_{0.33}\text{Al}_2(\text{Si}_{3.16}\text{Al}_{0.33})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$) であり、また、同時に非晶質シリカ ($\text{SiO}_2(\text{am})$) やゲル相も生成する。
- ・ 方沸石の生成によりガラス浸出/変質は加速される。一方、スメクタイトが生成する条件では、生成の有無に係わらずガラス浸出/変質速度は遅く、拡散過程に律速される。スメクタイト生成条件でのガラス浸出/変質は、水 (H_3O^+ : hydronium ion) の拡散をもとにした水和変質モデルを用いて良く説明できることから、この水の拡散がガラス浸出/変質の律速過程になると考えられる。水和変質モデルによる解析において、水の拡散係数 D_i は $10^{-22} \sim 10^{-21} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ (温度 60~120 °C) となり、その温度依存性から活性化エネルギーは 50~60 kJ mol^{-1} となる。浸出/変質が進行するにつれて、この拡散係数の値は見かけ上小さくなるが、これはガラス表面に鉱物 (スメクタイト) を含む変質層が成長し、拡散を抑制するためと考えられる。

(ii) 表面変質層—核種相互作用データ取得

- ・ Cs は B などの可溶性元素と同様にガラスから浸出するが、その多くはガラス表面変質層に生成するスメクタイトへのイオン交換による収着によって固定化される。ベントナイト共存下においても、Cs は B などの可溶性元素と同様にガラスから浸出するが、その多くはベントナイト (Na モンモリロナイト) へのイオン交換による収着によって固定化される。
- ・ 水和変質モデルを用いたガラス固化体の長期浸出挙動解析では、ガラス固化体の全量浸出までに要する時間が第 2 次取りまとめにおける設定 (約 7 万年) よりも長いと評価され、ガラス固化体に対してより長い耐久性が期待できる可能性を示した。

(iii) 地下深部の環境におけるガラス変質評価

- ・ 南関東の地下深部のボーリングコアを用いて、火山ガラスの変質調査を実施した結果、横浜孔の深度 2,000 m 付近では温度が約 70 °C に達しており、変質鉱物として斜プチロル沸石とモンモリロナイトが生じていた。
- ・ 40 °C 程度では顕微鏡観察下で顕著なガラスの変質は認められない。
- ・ 変質に関与した地下水の水質として、コア中の間隙水の水質分析および周囲の深部地下水組成から Na-Cl 型の地下水が関与していると考えられる。

(4) 今後の課題

鉱物化研究については、変質ガラス中には粉末 X 線回折で分析可能な結晶性の鉱物のみならず、非晶質の鉱物も生成し、それらが共存すると考えられるので、鉱物化反応の理解には、結晶性鉱物、非晶質相の分布状態や大きさといった変質層の形態 (morphology) に関する情報が必要である。また、熱力学的平衡計算およびナチュラルアナログとの比較による鉱物の生成条件の整理、評価およびその詳細な速度論的評価により、鉱物化を考慮したガラスの長期浸出モデルの構築と信頼性の向上が必要である。

これまでのガラス固化体からの核種の浸出挙動確認試験や浸出拡散複合試験は、いずれも大気下、蒸留水系において実施してきた。今後は、より処分環境に近い環境を模擬した系での試験、すなわち、還元環境下での試験および海水系地下水のようにイオン強度の高い系を模擬した試験の実施が必要である。また、ベントナイト共存下における核種の浸出速度の取得が課題である。

実ガラスを用いた試験を行うとともに、海外で行われている放射性ガラス浸出に関する原位置試験プロジェクト (CORALUS) への参加を通じたガラス浸出—核種移行複合モデルの検証も必要である。

また、ナチュラルアナログに関する本調査では、ガラスの変質割合が 0 % または 100 % の試料しか得られず、速度論による評価ができなかった。今後、変質割合の異なるデータを取得して、火山ガラス変質に関する活性化エネルギーを求め、ガラスの室内試験と対比させながらモデルの適用性確認に資するデータ取得が必要である。

3.3.2 核種の溶解現象に関する研究

(1) はじめに

溶解度制限固相は、溶解度を評価する際に設定すべきものであり、溶解度の大きさを決める重要な要因のひとつである。第2次取りまとめでは、Thなどのアクチニド元素の溶解度制限固相の変遷に関する実験データを踏まえ、アモルファス固相(am)から結晶性固相(cr)への変遷により溶解度が低下する可能性を示し、長期的な固相変遷現象の重要性について記述した。しかしながら、これらのアクチニド元素の固相変遷や共沈現象については報告例が極めて少ない。したがって第2次取りまとめでは、アクチニド元素ではアモルファス固相を溶解度制限固相として仮定したり、Raについては、ガラス固化体中のRa/Ca比より地下水中に溶解するRaを見積もる簡易法を採用した。

第2次取りまとめ以降、固相変遷現象を明らかにするために、アクチニド元素の溶解度制限固相の変遷に関する研究として、米国DOE(PNNL)との共同研究を進めている。また、Raの共沈現象に関する実験的研究に基づく現象解析も進めている。これらは、最新の知見に基づくモデルやデータベース更新という事業の実施主体や安全規制のニーズに合致するものである(原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会, 2000; 原子力発電環境整備機構 2004)。以下に溶解度制限固相の変遷および共沈現象モデルの開発に関する課題を示す。

(i) アクチニド元素などに関する溶解度制限固相の変遷に関する研究

第2次取りまとめまでのThO₂(am)からThO₂(cr)への固相の変遷に関する研究(Rai et al., 2000)に引き続き、U(IV)についても還元条件においてUO₂(am)からUO₂(cr)への固相の変遷に関する研究を実施し、現実的な溶解度設定のために非晶質固相の結晶化の傾向を確認する。また、アクチニド元素以外ではFe, Ceなどを用いて、含水酸化物、酸化物の溶液中での結晶化に関する基礎的な研究を進める。

(ii) 共沈データの取得と固溶体モデル適用性の検討

処分環境におけるRaの濃度は、Ra純粋固相(たとえばRaCO₃(s)やRaSO₄(s))の溶解度積未達であっても、化学的類似性のあるCaを含む固相による共沈反応により支配されると考えられる(Berner, 1995, 2002)。処分環境において、Caを含む炭酸塩固相は方解石が支配的と考えられるが、方解石に対するRaの共沈反応についての実験データは十分に得られていない。したがって、信頼性の高い溶解度設定のために、元素の化学的類似性を考慮しBaをRaに対する模擬元素として用いて、Caの炭酸塩に対するBaの共沈データを取得する。さらに、得られた共沈データに基づき、固溶体モデルなどによるRa溶解度の評価手法を検討する。

アクチニド元素の溶解度制限固相についても、より現実的な固相を評価するために、端成分の熱力学データが充実しているUO₂(am)–NpO₂(am)系の固溶体現象に関する実験的研究を実施し、理想固溶体モデルの適用性を確認する。

(2) 研究内容

(i) アクチニド元素などに関する溶解度制限固相の変遷に関する研究

従来のThについての研究成果を踏まえ、還元条件、高温での加速条件(90℃)で、酸化還元条件に鋭敏なウランの研究を行い、水溶性ウランIV価はUO₂(am)からUO₂(cr)へ固相が変化すること、それに伴い溶解度が変化することを確認した。その結果を図3.3.2-1に示す。図中実線はUO₂(cr)、破線はUO₂(am)の溶解度の計算値を示す。固相のX線回折からpH<~1.2で支配固相はUO₂(cr)、pH>~1.2で支配固相はUO₂(am)と同定された。また、本研究より、処分環境条件において、長期間のうちにUO₂(am)が熱力学的により安定なUO₂(cr)に変化するとすれば、それに伴いウラン溶解度も低下する可能性があることも示された(Rai et al., 2002)。

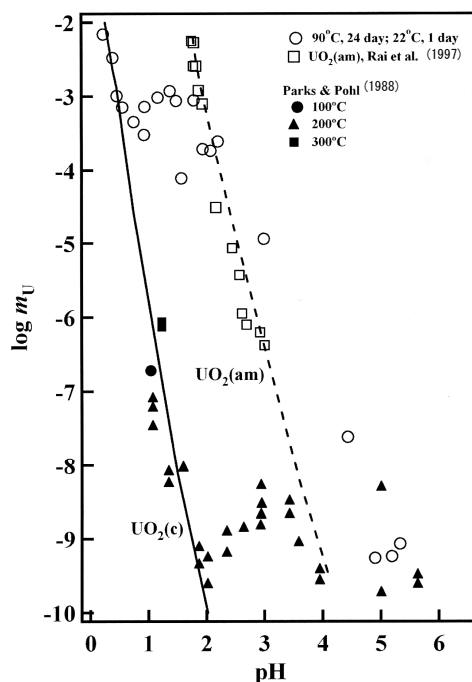


図 3.3.2-1 90 °Cにおける $\text{UO}_2(\text{am})$ の溶解挙動 (Rai et al., 2002)

また、アモルファス固相の結晶化による溶解度変化の知見を得るために、東北大学との共同研究により、Fe、Ce などを用いて、含水酸化物、酸化物の溶液中での結晶化に関する基礎的な研究を実施した (朽山ほか, 2002)。Fe に関しては、非晶質水酸化鉄からゲーサイトへの変化、Ce については III 価、IV 価の Ce 沈殿生成とその熟成時の化学形の変化について検討を行った。特に Ce の場合は、沈殿生成時の化学的環境 (pH, Eh, 温度) が結晶化に影響を及ぼすことが示された。

(ii) 共沈データの取得と固溶体モデル適用性の検討

Ba を Ra の模擬元素とし共沈実験を行った。実験方法としてはフリードリフト法 (Meece and Benninger, 1993) を用いた。この手法は、溶液中の P_{CO_2} を、炭酸ガスのバブリングおよび脱ガス量の調整により制御し、pH を変化させ方解石の沈殿を生成する方法である。温度は 25 °C とし、溶液 pH は P_{CO_2} 変化に伴い約 6.0 から約 8.2 に変化させた。図 3.3.2-2 に実験結果 (中澤ほか, 2004 ; 吉田ほか, 2004, 2005) を文献値 (Tesoriero and Pankow, 1996) とともに示す。図は、元素分配比 (= (固相中 Ba/Ca mol 比) / (溶液中 Ba/Ca mol 比)) が方解石沈殿速度 (v [$\text{nmol mg}^{-1} \text{sec}^{-1}$], mg は実験に用いた種結晶の単位重量) により変化し、沈殿速度が遅くなるにつれて元素分配比が一定の値となることを示している。処分環境では、沈殿速度が遅い状態であると予想され、この条件における元素分配比は、前述の実験結果により $2.6 \times 10^{-3} \sim 1.2 \times 10^{-2}$ と求められた。第 2 次とりまとめでは、Ra 溶解度評価のための簡易的共沈モデル (東ほか, 1999) において元素分配比を 1 と仮定して Ra 溶解度を設定している。本実験で取得した元素分配比をこの簡易的共沈モデルに用いると、Ra 溶解度は 50 ~ 100 倍程度高い値となる。

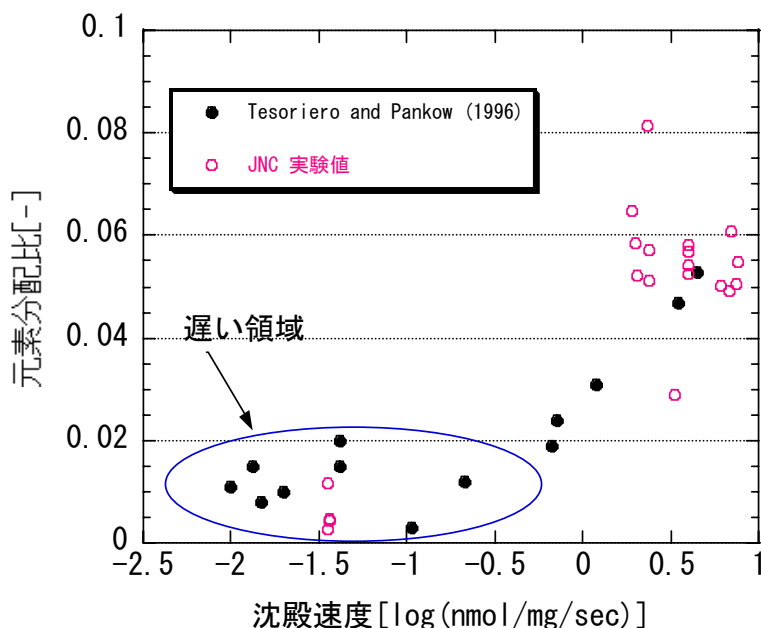


図 3.3.2-2 方解石沈殿速度と元素分配比

次に、沈殿速度が遅い条件で得られた共沈データを用いて、非理想固溶体のギブスの自由エネルギーに関する式に基づく Ra 溶解度の評価手法を検討した。固溶体反応を仮定したのは、Ba (Ra) の方解石に対する共沈反応が、菱面体構造の方解石結晶内における Ca との同形置換反応が主であると考えられるためである。固溶体反応式には、(3.3.2-1)式の非理想系の Margules 式 (Thomson, 1967) を用いた。

$$\Delta G_{SS} = X_{BaCO_3} \mu_{BaCO_3} + X_{CaCO_3} \mu_{CaCO_3} + RT(X_{BaCO_3} \ln X_{BaCO_3} + X_{CaCO_3} \ln X_{CaCO_3}) + WX_{BaCO_3} X_{CaCO_3} \quad (3.3.2-1)$$

ここで、 ΔG_{SS} : 固溶体固相のギブスの自由エネルギー [kJ mol^{-1}], X_{BaCO_3} , X_{CaCO_3} : $BaCO_3$ と $CaCO_3$ の mol 存在比, μ_{CaCO_3} , μ_{BaCO_3} : 端成分のギブスの自由エネルギー [kJ mol^{-1}], R : 気体定数, T : 温度 [K]。

Ba の端成分は菱面体構造の $BaCO_3(\text{cr})$ とし、Sverjensky and Molling (1992) のギブスの生成自由エネルギー ($\Delta_f G^\circ$) の値を用いた。Margules 式はひとつのフィッティングパラメータ定数 (W) を含み、この W の値は共沈データからのフィッティングにより導出した。これらの手順により、上記の固溶体反応式を用いて Ba(Ra)/Ca 存在比の異なる固溶体固相のギブスの自由エネルギーを求めた。その結果、これらの熱力学データを地球化学計算コード PHREEQC (Parkhurst, 1995) に入力し、与えられた溶液条件に対して最も安定な固溶体固相を抽出するとともに、上記考え方に基づく Ra の溶解度を導出することが可能となった。

一方、アクチノイド元素の固溶体の評価も実施した。固溶体モデルによる溶解度評価に当たっては、現状では実験データが不足していることが国際的にも指摘されている (OECD/NEA, 2001)。そこで、 $UO_2(\text{am})$ や $NpO_2(\text{am})$ といった端成分の熱力学データが充実している U(IV) と Np(IV) を対象に、 $UO_2(\text{am})$ - $NpO_2(\text{am})$ 系の固溶体現象に関する実験的検討を行った。U(IV) と Np(IV) の固溶体に関わる熱力学的特性を把握するため、U(IV) の割合を 0.05 から 0.95 に変えた ($U_x Np_{1-x}$) $O_2(\text{am})$ 沈殿物を作製し、低濃度から高濃度の K_2CO_3 および $KHCO_3$ 溶液中で溶解度を測定した (Rai et al., 2004)。 K_2CO_3 溶液中での $NpO_2(\text{am})$, ($U_{0.95}$, $Np_{0.05}$) $O_2(\text{am})$ および ($U_{0.05}$, $Np_{0.95}$) $O_2(\text{am})$ の実験結果と理想固溶体モデルによる計算結果との比較を図 3.3.2-3 に示す。X 線回折の結果から、溶解度制限固相は非晶質であり、U と Np はいずれも

IV 価であること、平衡時の沈殿物が U と Np の固溶体であることが推定された。また、理想固溶体を仮定した場合の Np(IV)や U(VI)の溶解度の計算結果が実験値とほぼ一致した。これらのことから、U(IV)と Np(IV)は理想固溶体を形成していると推定され、これらの溶解度を熱力学的に評価することが可能であることが分かった。

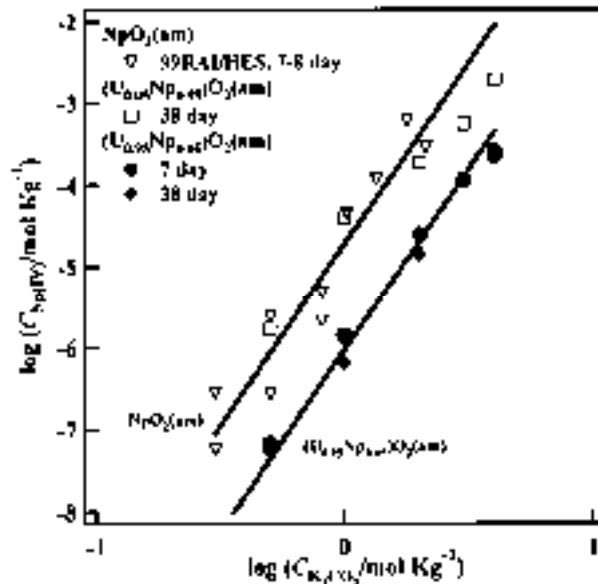


図 3.3.2-3 実験結果と理想的な固溶体を仮定した計算結果との比較 (Rai et al., 2004)
(直線が計算結果を示す)

(3) 結論

(i) アクチニド元素などに関する溶解度制限固相の変遷に関する研究

第2次取りまとめまでの $\text{ThO}_2(\text{am})$ から $\text{ThO}_2(\text{cr})$ への固相の変遷に関する研究に引き続き、U(IV)についても還元条件において $\text{UO}_2(\text{am})$ から $\text{UO}_2(\text{cr})$ へと固相が変遷することを確認した。これらの結果は、長期的には溶解度制限固相の非晶質から結晶性固相への変遷が期待できることを示しており、第2次取りまとめにおいて非晶質固相を溶解度制限固相と設定して評価した Th, U などの溶解度が保守的であることを支持する知見が得られた。

(ii) 共沈データの取得と固溶体モデル適用性の検討

処分環境で期待される方解石沈殿速度の遅い領域での Ba(Ra)と Ca の共沈データを取得するとともに、固溶体モデルによる Ra 溶解度の評価手法を示した。さらに、アクチニド元素の固溶体现象に関する実験的研究に基づき (U(IV), Np(IV)) $\text{O}_2(\text{am})$ の固溶体の溶解挙動が理想固溶体モデルにより表現できることが分かった。

(4) 今後の課題

(i) アクチニド元素などに関する溶解度制限固相の変遷に関する研究

III 価, IV 価のアクチニド元素を対象にした溶解度制限固相およびそれらの長期変遷に関する実験データの拡充, および溶解度制限固相や固溶体の安定性と安全評価での溶解度設定の関係についての検討を行う。

(ii) 共沈データの取得と固溶体モデル適用性の検討

モデルの適用性確認のため、より低い Ba 濃度での実験などについてデータを取得し、固溶体モデルの改良と適用範囲の拡大を行う。

3.3.3 核種の収着・拡散現象に関する研究

(1) はじめに

人工バリアおよび天然バリアに対する放射性核種の収着、遅延現象は地層処分システムに期待される重要な安全機能のひとつである。核種移行評価においては、固相への核種の分配係数（以下、「Kd」という）および実効拡散係数（以下、「De」という）という値が用いられている。

第2次取りまとめにおいては、これらの値に対して、わが国の幅広い地質環境を対象として設定した環境条件に類似した条件で取得された実験値をもとに、保守性を考慮して設定を行った。しかしながら、緩衝材や岩石への核種の収着について、固相のどのような収着サイトにどのような反応機構で収着されるのか、あるいは微視的にどの空間をどのように拡散していくのかなどの科学的な現象理解については国際的にも課題とされている。

現象を科学的に説明することは、処分システム全体に対する信頼性の向上につながるとともに、知識の欠如による値の不確実性を低減でき、過剰に保守的な値を設定することを回避することができる。さらに、Kd、Deは環境条件に依存した値であるが、現象理解が進むことで、これらの値の環境条件依存性を推定するモデルの構築が可能となる。このことにより、実際の地質環境を対象とした際に環境条件に応じたKd、Deの設定を行い安全評価に反映することが可能となる。また、場の不均一性や環境条件の不確実性に依存したKd、Deの不確実性をより的確に把握し安全評価に反映することも可能となる。さらに、このような現象理解に基づくモデルの構築は、安全評価のためのデータ取得の合理化にもつながるものと期待される。

このような認識に基づき、収着・拡散現象について、科学的により本質的な現象理解を進める努力を行うと同時に、理解のレベルの向上に応じて、値の設定や変動幅の推定に資することができるモデルの構築を行っていくこととした。

(i) 収着機構の理解とそれに基づく Kd 設定手法の検討

溶存化学種の変化が収着に及ぼす影響の把握を目的として、溶存化学種分配が変化するように溶液組成を系統的に変化させた条件で収着試験を行い、測定されるKdと化学種分配との関係を把握し、この関係を説明可能なモデルの構築を行う。

また、固相特性や溶存化学種を考慮し、イオン交換反応や表面錯体反応により収着を記述する熱力学的収着モデルの安全評価への適用可能性について、国際的に情報を共有し課題を抽出することを目的とした国際共同プロジェクト（OECD/NEA 収着プロジェクト Phase II）に参画し、国際的な最先端の知見を整理する。

さらに、実際の地質環境条件（幌延地域の堆積岩）を対象として、Kd測定、収着メカニズムの解明を行い、収着モデルの検討を行う。

(ii) 拡散機構の理解とそれに基づく De 設定手法の検討

緩衝材中の拡散挙動については、環境条件依存性の把握を目的として、共存塩濃度、温度などをパラメータとした拡散試験を実施する。これらの試験結果からイオンの種類に対応した緩衝材中の微視的拡散経路に対する考察を行う。

さらに、より基本的な科学的法則に基づいて、微視的レベルから、緩衝材中の拡散挙動を理解することを目的として、分子シミュレーションによるスメクタイト近傍での水分子およびイオンの挙動に関する考察を行うとともに、均質化法という数学的手法を用いて緩衝材中での拡散挙動に関するシミュレーションを実施する。

岩石中の拡散挙動についても、共存塩濃度の影響について拡散試験を実施し、その影響について考察を行うとともに、拡散試験から得られるKdとバッチ式収着試験から得られるKdの整合性について例示的に検討を行う。

また、マトリクス拡散深さの検討に資する室内試験データの拡充を行う。第2次取りまとめにおいては、新鮮な花崗岩のような未変質部分については、拡散深さに制限はないと

の認識を持ちつつも、保守的に既往のナチュラルアナログから得られる値をもとにマトリクス拡散深さの設定を行った。一方、既往の室内試験の多くが5~10 mm程度の厚さの岩石試料を用いているなど、マトリクス部へのより深い核種の侵入を示すための十分なデータが得られていなかったことから、長尺試料に対する拡散試験を実施する。

(iii) オーバーパック腐食生成物による収着・拡散への影響確認

オーバーパック腐食生成物が収着に与える影響に関する試験として、マグネタイトによる核種の還元および収着挙動を把握するために、マグネタイトによるNpの還元および収着挙動に関するデータ取得を実施する。

また、オーバーパック腐食生成物が核種の拡散に及ぼす影響を把握するために、腐食生成物の緩衝材中の拡散挙動およびNpの拡散に及ぼす腐食生成物の影響に関するデータ取得を実施する。

なお、第2次取りまとめ以降の地層処分の具体化に向けた動きの中でも、本分野の重要性が認識されている。たとえば、事業の実施主体では、サイト環境条件とそれに応じた処分場のデザインの特徴を反映したデータセットの作成や、最新の知見を反映させたモデルおよびデータの設定が必要であるとしており（原子力発電環境整備機構，2004），本課題はこれらに資するものである。一方、安全規制側からは、「評価において用いるべきパラメータについては、評価結果が過度に保守的とならないよう検討することが必要」であること、また、データの信頼性・客観性の確保が求められており（総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会，2003），これらの要求に応えるためにも、本課題は重要である。

(2) 研究内容

(i) 収着機構の理解とそれに基づくKd設定手法の検討

(a) 還元条件・炭酸共存下におけるスメクタイトに対するNpの収着挙動

アクチニドIV価は、処分環境で想定される炭酸共存の中性~アルカリ性水溶液中では、ヒドロキソ炭酸錯体あるいは炭酸錯体を形成する。これらの溶存化学種の変化が収着に及ぼす影響を明らかにすることを目的として、QUALITYを利用し、還元条件・炭酸共存下におけるNpのKdを求めるバッチ式収着試験を実施した。さらに、その収着挙動を化学種分配と対応させて考察した（北村・戸村，2003）。

バッチ式収着試験は、窒素雰囲気中（ $O_2 < 1 \text{ ppm}$ ）で、初期Np濃度を約 $10^{-7} \text{ mol dm}^{-3}$ 、 pH_c （ $= -\log[H^+]$ ）を約8に、イオン強度を1.0に、全炭酸濃度 C_T を $0.04 \sim 1.0 \text{ mol dm}^{-3}$ に調整した水溶液に、精製したスメクタイトとNp-237溶液を導入した。還元剤として 0.01 mol dm^{-3} の亜二チオン酸ナトリウム（ $Na_2S_2O_4$ ）を用いたが、比較のために $Na_2S_2O_4$ を添加しない非還元条件での試験も実施した。一定期間振とう後、水溶液中のNp濃度の定量を行い、Kdを決定した。

得られたKdの C_T 依存性の結果の例を、図3.3.3-1に示す。これらはいずれも振とう期間が約2週間のときの結果であるが、Kdの時間変化から2週間でほぼ平衡に到達していることを確認している。還元条件（ $E_h < 0.2 \text{ V}$ ）では低 C_T でKdが大きく、 C_T の増加に伴ってKdが減少する。一方、非還元条件（ $E_h \sim 0.1 \text{ V}$ ）ではKdの C_T 依存性は小さく低いKdを示しており、 $C_T < 0.5 \text{ M}$ においては、還元条件と非還元条件でKdに有意な差のあることが分かる。

この結果に対し、試験で得られたKdが(3.3.3-1)式に示すように、Np(IV,V)の溶存化学種ごとの分配係数 K_{di} の加成則で表すことができるものと仮定し、最小二乗法により溶存化学種ごとの K_{di} を導出した。

$$Kd = \sum_i Kd_i X_i \tag{3.3.3-1}$$

ここで、

- Kd : 元素の分配係数 [m³ kg⁻¹]
- Kd_i : 化学種 i の分配係数 [m³ kg⁻¹]
- X_i : 化学種 i のモル分率 [-]

Kd_iの導出にあたり、溶液中の化学種分配は、各実験点の pH, Eh および C_Tの測定値をもとに OECD/NEA により整備された熱力学データベース (Lemire et al., 2001) と Kitamura and Kohara (2002) により報告されている Np(CO₃)₂(OH)₂²⁻の熱力学データを用いて導出した。ただし、Np(IV)と Np(V)の分配に関しては、試験条件において酸化還元が平衡に到達していない可能性を否定できなかったため、フィッティングパラメータとした。最小二乗法によって得られた Kd_iを表 3.3.3-1 に、各実験点に対する計算値を図 3.3.3-1 中に示す。

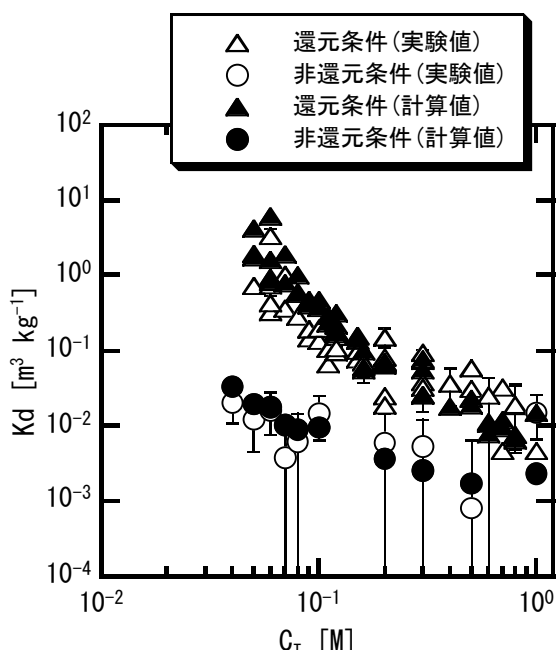


表 3.3.3-1 最小二乗法によって得られた溶存化学種ごとの分配係数 Kd_i の一覧

化学種	Kd _i [m ³ kg ⁻¹]
NpO ₂ ⁺	6.74 × 10 ⁻¹
NpO ₂ CO ₃ ⁻	4.07 × 10 ⁻⁴
NpO ₂ (CO ₃) ₂ ³⁻	6.46 × 10 ⁻³
Np(OH) ₄ (aq)	4.88 × 10 ¹
Np(CO ₃) ₄ ⁴⁻	2.25 × 10 ⁻¹
Np(CO ₃) ₅ ⁶⁻	4.28 × 10 ⁻³
Np(CO ₃) ₂ (OH) ₂ ²⁻	1.91 × 10 ⁻¹

図 3.3.3-1 炭酸共存下におけるスメクタイトに対する Np の分配係数の全炭酸濃度 (C_T) 依存性とその解析結果

得られた結果から、Np(OH)₄(aq)の Kd_iが最も大きく、次いで NpO₂⁺と Np(CO₃)₄⁴⁻の Kd_iが大きいことが分かる。また、Np(V)より Np(IV)の方が収着されやすく、同じ価数同士の比較では炭酸錯体、ヒドロキシ炭酸錯体の Kd_i が小さいことが分かる。なお、NpO₂⁺が支配化学種であると推定される既往研究において 10⁻¹ m³ kg⁻¹ オーダーの Kd が報告されており (Ames et al., 1981 ; Gorgeon, 1994), 化学種ごとに Kd を与えた本研究での導出結果と比較的近い値であることから、本研究結果の妥当性が支持される。また、Np(V)の炭酸錯体である NpO₂CO₃および NpO₂(CO₃)₂³⁻の Kd が小さいことも報告されており (Kohler et al., 1999), 本研究から得られた結果と調和的である。Np(OH)₄(aq)については、固相表面水酸基 (S-OH) と OH 基を介して特異的に収着したため、大きな Kd が得られたと予想される。

以上の結果から、溶存化学種ごとの分配係数を与えることにより、溶液条件の変化に伴う Kd の変化を適切に説明することができた。

(b) OECD/NEA 収着プロジェクト

OECD/NEAにおいては、2000年9月から収着プロジェクト Phase II を実施しており、様々なモデル化手法の得失やモデルの適用限界などを明らかにすることを目的として、バッチ式収着試験データを設定問題としたモデル化のベンチマークテストが行われた。設定されたテストケースは7ケースで、人工バリアおよび天然バリアの両方を対象とし、粘土（スメクタイト）、岩石（風化した片岩）、地質媒体中で収着に寄与すると考えられる代表的な鉱物（ゲーサイト、石英など）、および土壌が選ばれた。これらの中からモデリングチームが任意にテストケースを選択してモデル化に取り組んだ。モデリングチームは11ヶ国21チームに及び、サイクル機構もモデリングチームとして参加し、3つのテストケースについてモデル化を実施した（神徳ほか、2003）。

得られた結果のうち、安全評価に対する熱力学的収着モデルの有効性および熱力学的収着モデルを用いた核種の収着モデリングに関して、OECD/NEA のプロジェクトとしての一般的な推奨のうち、主なものは以下の通りである。

① 安全評価に対する熱力学的収着モデルの有効性

- ・熱力学的収着モデルは、かなり広い範囲の鉱物相や水溶液中でのバッチ法による K_d の実験値に対して、多くの場合その傾向が再現できた。熱力学的収着モデルは様々な化学条件における核種の収着データを推定することができ、 K_d や収着等温線より多くの利点を有する。
- ・熱力学的収着モデルは、 K_d を決定する地球化学的因子を定量化できるため、その価値が多くの系で示されている。
- ・実験値に対するモデル予測の平均誤差は、 $0.5 \log K_d$ の範囲内であった。このような再現性はシステムの理解の確認や安全評価における K_d の選定を補完するために使うことができる。
- ・熱力学的収着モデルの信頼性を向上させるためには、最終的なモデル選定に至る判断の過程を明確に記述し、追跡性を担保する必要がある。

② 熱力学的収着モデルを用いた核種の収着モデリングに関する一般的な推奨

- ・実験者はモデル化に必要な実験条件を考えるべき（あるいは、モデル化を行う側から実験者にモデル化に必要な実験条件に関する指針が示されるべき）である。また、同様にモデル化を行う者は高収着や低収着時の K_d の精度の悪さなどの実験データセットの限界に気付くべきである。
- ・熱力学的収着モデルを適切に表現するためには、 K_d の重要な地球化学パラメータに対する依存性を示すデータセットが要求される。
- ・基本となる放射性元素の熱力学データベースは適切でなければならない。たとえば核種と炭酸の相互作用に関する熱力学データが十分でないならば、明らかに炭酸系地下水に対して熱力学的収着モデルを開発することは困難である。
- ・ K_d データ取得計画の検討において、熱力学的収着モデルは K_d に対する化学パラメータの不確性の影響を明らかにするための感度解析に使用されるべきである。このことは、実験データが適切な化学パラメータに対して取得されることを意味する。

以上より、OECD/NEA の収着プロジェクト Phase II で示されたことは、現段階では詳細な収着現象解析モデル（熱力学的収着モデル）による推定のみで安全評価で用いる K_d を決定することは適切ではないものの、そのようなモデルは、安全評価における K_d 選定値の補完や感度解析に使うべきである、ということである。

(c) 幌延地域の堆積岩に対する収着試験研究

第2次取りまとめ以降、地層処分技術の信頼性向上のために、実際の地質環境条件を対象とした、様々な研究開発を実施している。核種移行パラメータのひとつである K_d についても、実際の地質環境条件が与えられた場合のデータ取得方法の検討や、地質環境の不均一性や不確実性が収着特性に与える影響の把握方法、さらに現象理解に基づくそれらの影響の K_d 設定での取扱いといったことが課題となる。ここでは、その予察的な検討として、幌延の深地層の研究施設計画で採取された幌延地域の堆積岩と地下水を用いた収着試験を実施して収着メカニズムについて考察し、収着モデルを構築するとともに、その適用性について検討した。

堆積岩は、ボーリング調査 (HDB-3 孔) (山本ほか, 2003b) で得られた岩石コアから 4 種類の深度のものを用いた。深度の浅い 2 試料は声間層と呼ばれる珪藻質泥岩、深度の深い 2 試料は稚内層と呼ばれる硬質頁岩である。試料は、大気による酸化を避けるため、採取後現地で速やかにパラフィンコーティングを行い、試験室の雰囲気制御グローブボックス ($O_2 < 1 \text{ ppm}$) 内で開封し、外周部分を除去して粉砕したものを試料とした。試験溶液は、蒸留水、同ボーリング孔から採取した天然地下水、模擬地下水の 3 種類を用いた。模擬地下水は天然地下水の組成をもとに、試薬により調製した。天然地下水および模擬地下水のイオン強度はそれぞれ、約 0.3 および約 0.4 であり、主成分である Na^+ および Cl^- のほか、 K^+ 、 NH_4^+ 、 HCO_3^- などを含有している。これらの試料および溶液を用いて、トレーサ初期濃度、 pH などをパラメータとしてバッチ式収着試験を行い、それぞれの深度の試料に対する Cs 、 Se の K_d を取得した。試験溶液は地下深部の還元状態を再現するために H_2 バブリングにより Eh を $-300 \sim -200 \text{ mV}$ (vs. SHE) に維持した。また、これらの元素の収着挙動について検討するため、試料の鉱物組成分析なども実施した (Xia et al., 2004a, 2004b, 2005)。

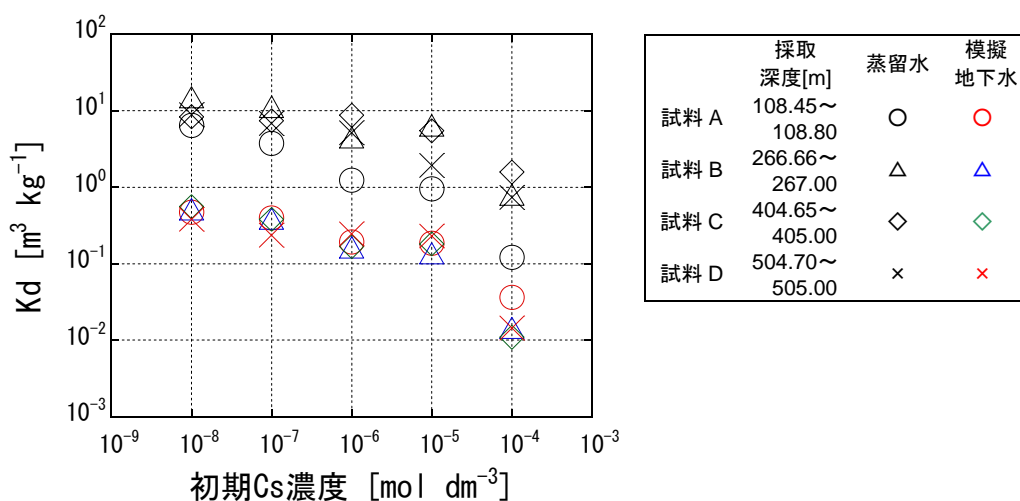


図 3.3.3-2 幌延地域の堆積岩に対する Cs の K_d

幌延地域の堆積岩に対する Cs の K_d は、 pH 依存性があまり見られず、試験溶液として蒸留水を用いた試験では $0.1 \sim 15 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ であり、溶液初期 Cs 濃度が増加すると K_d が低下する傾向が認められた。天然地下水と模擬地下水で K_d はほぼ等しく、それらは蒸留水の場合に比べ 1 桁程度低い K_d であった (図 3.3.3-2)。このことから、 Cs は主に pH 依存性の低いイオン交換性サイトへ収着し、天然および模擬地下水の場合には、他の陽イオンと競合するため、 K_d が低下するものと考えられた。EPMA および SEM-EDS 観察などにより、この Cs は主として試料中に含まれるイライトに収着されていることが確認された。 Se については、天然地下水を用いた場合、模擬地下水に比べて数倍高い K_d が得られた。収着試験後の試料の XANES (X 線吸収端近傍微細構造) スペクトル解析から、天然地下水においては収着さ

れた Se はほとんどが Se(0)であるのに対し、模擬地下水では Se(0)と Se(IV)が共存していることが確認された。このことから、天然地下水中に含まれる有機物が Se の酸化還元に影響を及ぼし、Kd にも影響を及ぼしたものと考えられた。Se の酸化還元挙動と収着メカニズムについては、継続して検討していく。

Cs の泥質岩に対する収着については、Bradbury and Baeyens (2000) が、含有されるイライトへのイオン交換反応により説明可能であるとしたモデルを提唱している。同モデルを幌延地域の堆積岩に対して適用を試みたところ、Cs の収着を概ね説明できることが分かった。今後は、試料中に含まれるスメクタイトの Cs 収着への寄与、Bradbury and Baeyens (2000) がレファレンスとしているイライトと、試料中に存在するイライトのイオン交換特性の違いなどについても検討を行うとともに、収着モデルを用いた幌延地域の堆積岩に対する Kd の不確実性の幅の考察などを行う予定である。

(ii) 拡散機構の理解とそれに基づく De 設定手法の検討

(a) 緩衝材中の陰イオンの拡散挙動

安全評価において、ベントナイト中の放射性核種の実効拡散係数 D_e および見かけの拡散係数 D_a は、その移行挙動を把握するうえで重要なパラメータである。 D_e および D_a は間隙水中の塩濃度に影響されることが考えられ、その影響を定量的に把握することが必要となる。また、Se をはじめとして、安全評価上重要な元素のいくつかは、想定される処分環境条件で陰イオンの形態をとる。アクチニド元素も炭酸錯体やヒドロキソ炭酸錯体として陰イオンの形態で存在することを考慮すると、陰イオンの移行挙動を理解することは重要である。そのためケイ砂混合率および塩濃度をパラメータとし、処分場でのセメント系材料の利用を考慮した高 pH 条件で陰イオンの透過拡散試験を行い、 D_e および D_a を取得するとともに、拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率および塩濃度の影響を評価した(石寺ほか, 2004)。なお、本試験では、TRU 廃棄物の処分において想定される環境条件も考慮し、塩濃度を NaNO_3 にて調整することとした。

試料はクニゲル V1 (クニミネ工業製)、乾燥密度 1.6 Mg m^{-3} 、 $\text{pH}=12.5$ を基本とし、パラメータとしてケイ砂混合率: 0, 30, 50 wt%, NaNO_3 濃度: $0.01 \sim 5 \text{ mol dm}^{-3}$ の条件で試験を行った。ベントナイトは所定の重量比でケイ砂と混合した後、拡散セルに圧縮充填した。その後、蒸留水を加えてベントナイトを含水飽和させた後、 NaNO_3 溶液に交換し静置することにより、ベントナイトを NaNO_3 溶液で飽和させた。高濃度側試験溶液にトレーサを添加し、拡散試験を開始した後、所定の期間ごとに低濃度側試験溶液中のトレーサ濃度を測定し破過曲線の傾きから実効拡散係数 D_e を求めた。また、試験終了後、ベントナイトをスライスし、ベントナイト中のトレーサの濃度勾配を調べ、フィックの第 1 法則に従って D_a を求めた。

試験の結果、得られた CO_3^{2-} , Cl^- , I^- の D_e の値は $10^{-13} \sim 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 、 D_a は $10^{-12} \sim 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 程度であり、いずれの陰イオンでも NaNO_3 濃度の増加に伴って D_e が増大する傾向が認められた。この CO_3^{2-} , Cl^- , I^- の D_e の増大は試験溶液のイオン強度増加に伴う陰イオン排除効果の低下によって引き起こされたものと推測される。ここで、圧縮ベントナイト中を拡散する陰イオンは、クニゲル V1 の主要構成鉱物であるスメクタイトの負電荷により反発され、スメクタイト表面近傍でその濃度が低下する。この陰イオン排除効果により、陰イオンの拡散に寄与する有効間隙率が低下すると考えられている。一方、間隙水中のイオン強度が増加すると、スメクタイトの負電荷が影響を及ぼす範囲が減少し、有効間隙率が高くなるため、 D_e の増大が引き起こされると考えられている。陰イオンの有効間隙率は(3.3.3-1)式で定義される保持因子 α より見積もることができる。なお、 D_a と D_e の関係は保持因子を用いて、(3.3.3-2)式で記述される。

$$\alpha = \varepsilon + \rho Kd \quad (3.3.3-1)$$

$$De = \alpha Da \quad (3.3.3-2)$$

ここで、

α : 保持因子 [-]

ε : 間隙率 [-]

ρ : 乾燥密度 [kg m^{-3}]

Kd : 分配係数 [$\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$]

De : 実効拡散係数 [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]

Da : 見かけの拡散係数 [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]

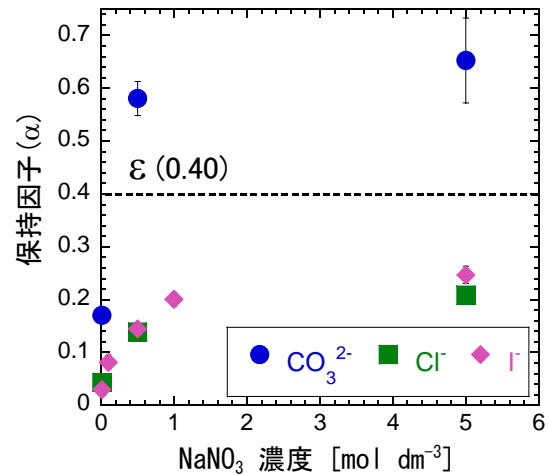


図3.3.3-3 陰イオンの拡散における保持因子 α の NaNO_3 濃度依存性

イオンの固相への収着がない ($Kd=0$) と仮定すると、 De と Da から求められる保持因子 α は、これらのイオンが実際に拡散している間隙率と等しくなる。図 3.3.3-3 に α の NaNO_3 濃度依存性を示す。いずれの陰イオンについても α は、 NaNO_3 濃度の増加に伴って増大した。 Cl^- および I^- の α は飽和試料の含水比から導出される全間隙に対する間隙率 $\varepsilon=0.40$ よりも低い値を示した。この結果は、陰イオン排除効果により、全間隙を拡散できていないことを示している。また、保持因子 α が NaNO_3 濃度の増加に伴って増大するのは、 NaNO_3 濃度の増加により陰イオン排除効果が低下し、有効間隙率が増大したことを示すものであると考えられる。

CO_3^{2-} については、 NaNO_3 濃度の増加に伴い保持因子 α が増大するという傾向はほかの陰イオンと同様であるが、 NaNO_3 濃度が 0.5 および 5 mol dm^{-3} の条件において α が $\varepsilon=0.40$ よりも大きくなるという結果が得られた。これは、ベントナイト中に CO_3^{2-} が保持されている可能性を示している。この原因として、クニゲル V1 中に含まれる方解石の影響が考えられる。すなわち、トレーサとして拡散している $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ は一定量が方解石として沈殿し、クニゲル V1 中に保持されると考えられる。

(b) 緩衝材中の微細間隙構造などを考慮した核種移行挙動に関する研究

圧縮ベントナイトからなる緩衝材の間隙は、主成分鉱物である層状粘土鉱物のスメクタイトの層間と、鉱物粒子間の間隙（外部間隙）に大別されると考えられている。緩衝材中を核種が移行する際に、緩衝材の仕様（乾燥密度、ケイ砂混合率）、核種の溶存形態、間隙水水質などに応じて、微細間隙構造のどこをどのように移行するかを理解し、科学的に説明することは、(1)で述べたように、本質的に重要なことであると考えている。この認識に基づき、核種移行挙動に関する理解を深めるために、様々なアプローチによる実験的研究を進めてきた。

温度をパラメータとした拡散試験を実施することで、拡散の活性化エネルギーを得ることができる。活性化エネルギーは拡散プロセスを反映したものであることから、その値から拡散プロセスの違いや変化について考察した。試料は交換性陽イオンを Na 型に置換・精製したスメクタイト（モンモリロナイト）を用いた。このスメクタイトにケイ砂を混合させた試料および異なる濃度の NaCl 溶液で含水させた試料に対して、いくつかの温度条件で非常定の拡散試験を行い、 Da の温度依存性から拡散の活性化エネルギーを取得した。その結果、 Na^+ の拡散の活性化エネルギーは、乾燥密度 1.8 Mg m^{-3} 、ケイ砂混合率 $15.5 \sim 71.4 \text{ wt}\%$ の範囲において、ほぼ 18 kJ mol^{-1} の一定値となった。ケイ砂を添加していない試料においては、乾燥密度が増加すると活性化エネルギーが変化することが報告されており、ケイ砂の添加に

よって支配的な拡散プロセスが変化する可能性が示唆された。また、 Na^+ の拡散の活性化エネルギーは、純水で含水した試料においては 14 kJ mol^{-1} の値が報告されているが、 NaCl 濃度が増加するとともに増加し 0.1 mol dm^{-3} で 23 kJ mol^{-1} の値を示した後、さらに NaCl 濃度が増加すると活性化エネルギーは減少し、 0.5 mol dm^{-3} で 17 kJ mol^{-1} の値を示した。 NaCl 濃度が希薄な条件では、スメクタイト表面から形成される電気 2 重層の有効厚さが十分に大きいため、 Na^+ はスメクタイト粒子の外表面を支配的な拡散経路とするものと考えられる。しかしながら、 NaCl 濃度が増加するにつれて、電気 2 重層の有効厚さが低下しスメクタイト粒子間での表面の連続性が失われていくため、支配的な拡散プロセスがスメクタイトシート層間内のイオン交換を伴う拡散へと徐々に変化し、 0.1 mol dm^{-3} 程度まで観察される活性化エネルギーの増加が引き起こされるものと考えられる。さらに NaCl 濃度が高くなると、スメクタイトシートに収着されている Na^+ に比べて、外部間隙中に存在する Na^+ の割合が増加し、支配的な拡散プロセスが外部間隙中での拡散へと変化するため、活性化エネルギーが低下するものと考えられる。これに対し、 Cl^- の拡散の活性化エネルギーは NaCl 濃度によらず一定となり、拡散プロセスが NaCl 濃度に依存しないことが示唆された。これは、陰イオン排除効果により Cl^- はスメクタイト表面への収着や層間への侵入がなく、外部間隙中を拡散経路とするためと考えられている。しかしながら、得られた活性化エネルギー 12 kJ mol^{-1} は自由水中の Cl^- の拡散の活性化エネルギーに比べて低く、支配的な拡散プロセスが単純な外部間隙中の拡散ではない可能性が示唆された (小崎, 2003 ; 小崎・佐藤, 2004)。

また、乾燥させたスメクタイト試料を粉碎し、ふるいによって分別した粒径の異なる試料を用いて拡散試験を行うとともに、比表面積測定や粒子形状の観察、粒径分布測定、圧縮成型した試料の X 線マイクロ CT による 3 次元微細構造観察を行い、拡散挙動に及ぼすスメクタイト粒径の影響を調べた。拡散試験の結果、HTO および Cl^- の拡散係数は粗粒試料に比べ細粒試料の方が高い値が得られ、 Cs^+ においてはその逆の傾向を示した。比表面積及び粒径分布測定の結果からは、試料の粒径が異なっても、その粒子を形成しているスメクタイトシートにはほとんど差がないものと考えられた。しかしながら、X 線マイクロ CT 観察の結果から、圧縮成型されたスメクタイトが含水飽和すると、スメクタイト粒子内側部分は顕著な変化が起きずに粒子の外側部分がゲル化して粒子間の間隙を埋めるものと考えられ、含水飽和後も含水前の粒子の形状が残り、拡散係数に影響を及ぼしたものと考えられた (小崎, 2003)

一方、Suzuki et al. (2004) では、圧縮ベントナイト試料を調製し、重水 (HDO) を用いた透過拡散試験を、 $25 \sim 60 \text{ }^\circ\text{C}$ の条件で実施し、拡散の活性化エネルギーを求めている。活性化エネルギーの値は $19 \sim 25 \text{ kJ mol}^{-1}$ であり、この値は重水の自己拡散の活性化エネルギーとして報告されている値 (18.8 kJ mol^{-1}) (Mills, 1973) よりわずかに大きな値であった。また、乾燥密度の高い試料の方が高い活性化エネルギーの値を示した。このことは、(c)で述べる分子動力学計算の結果においてベントナイト中スメクタイト表面近傍の水分子が構造化しており、局所的に水分子の自己拡散係数が低下していることから、このスメクタイトの表面近傍の水分子の構造化が、活性化エネルギーの変化に寄与している可能性を示唆している。なお、第 2 次取りまとめにおける緩衝材中の実効拡散係数の設定においては、緩衝材中での実効拡散係数の温度依存のデータが存在しなかったため仮定に基づく補正を行なったが (Sato, 1998)、本研究により、緩衝材中の水の活性化エネルギーは自由水中のそれと大きく異なることが明らかとなった。今後、各種のイオンについても De の温度変化を確認していくことが望まれる。

(c) 計算科学的手法による緩衝材中の核種移行挙動理解に関する研究

従来、緩衝材中の核種移行評価のパラメータである Kd , De は、拡散試験あるいはバッチ式収着試験などの実験的に得られる値に基づいて設定されている。本研究では、緩衝材中の核種移行現象について、より基本的な科学的法則に基づいた新しい緩衝材中の物質移行モデ

ルを確立し、安全評価に用いる核種移行パラメータの妥当性の確認を行うことを目的とする。その手段として、分子シミュレーションのひとつである、分子動力学法 (MD) により、分子レベルでのスメクタイト結晶近傍における水分子やイオンの存在状態の推定や拡散係数などの物性値の導出を行い、それらの値を用いて均質化法 (HA) という数学的手法によりマクロレベルへの拡張を行い、緩衝材中の物質移行モデルを構築する。

本研究においては、まず、圧縮ベントナイト中の水の拡散挙動について MD-HA 結合解析を行い、トリチウム水を用いた拡散実験から得られる実効拡散係数との比較検討を行った (鈴木ほか, 2001)。解析にあたっては、ベントナイトの微細間隙構造をモデル化する必要がある。本研究では、比較対象の実験値がスメクタイト以外の随伴鉱物をほとんど含まないクニピア F に対するものであることから、スメクタイトのみが存在するものとし、図 3.3.3-4 に示すような、数枚から 20 枚程度のスメクタイト単位層の重なりからなる積層体を HA 解析の基本単位とした。また、圧縮試料の X 線回折結果などにに基づき底面間隔 (スメクタイト単位層厚さ + 層間距離) は、試料の乾燥密度に応じて 1.88 nm あるいは 1.56 nm とした。水の自己拡散係数はスメクタイト-水系での MD 計算に基づき設定した。図 3.3.3-5 に MD 計算結果の 1 例を示す。水の自己拡散係数はスメクタイトのシロキサン表面近傍で急激に低下することが分かる。圧縮ベントナイト (スメクタイト) 中の水の拡散係数についての MD-HA 結合解析の結果をトリチウム水のクニピア F に対する実測値とあわせて図 3.3.3-6 に示す。解析はスメクタイト積層体に方向性があることから、スメクタイト層に平行方向 (図 3.3.3-4 の左右方向) と垂直方向 (図 3.3.3-4 の上下方向) のそれぞれに対する拡散係数を求めた。クニピア F の圧縮試料は、スメクタイトが配向し、方向性を持つことから、圧縮方向と同一の方向に対する拡散試験結果 (スメクタイト層に対して垂直方向に相当) と、圧縮方向に垂直な方向に対する試験結果 (スメクタイト層に対して平行方向に相当) を区別した。MD-HA 解析により求められたスメクタイト層に平行方向の拡散係数は実測値より 2 倍程度大きい、乾燥密度に対する変化は一致した傾向を示している。スメクタイト層に垂直方向の拡散は、乾燥密度 1.0 Mg m⁻³ では実測値のほうが 3 倍程度大きい、乾燥密度 1.6 Mg m⁻³ 付近では、良い一致を示している。解析値と実験値の違いは、低密度試料の配向性が良くないことやモデルにおける屈曲度の取扱いなどによるものと考えている。

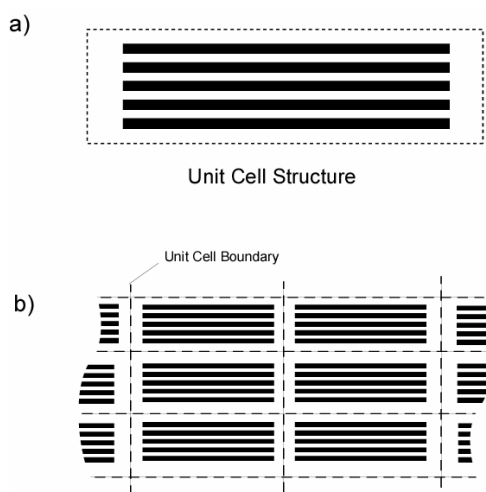


図 3.3.3-4 MD-HA 解析のための 2 次元間隙構造モデル

- a) ユニットセル構造
- b) 解析体系 (周期境界条件による ユニットセルの連続構造を仮定)

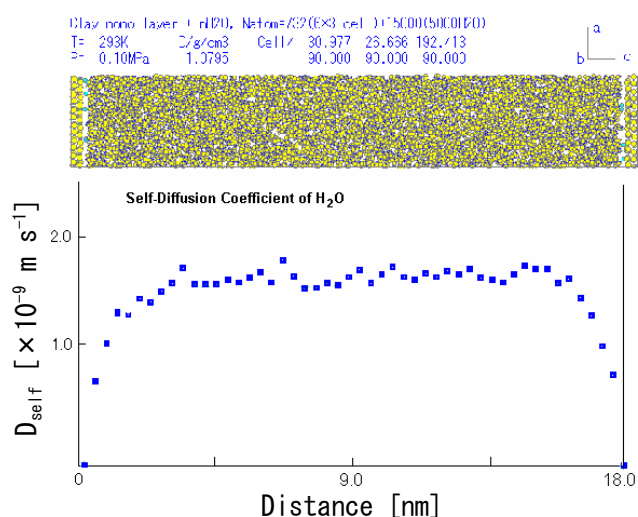


図 3.3.3-5 MD 計算によるスメクタイト層間の水の自己拡散係数分布

図の両側にスメクタイトのシロキサン表面が存在。層間距離は十分に広い 18 nm とした

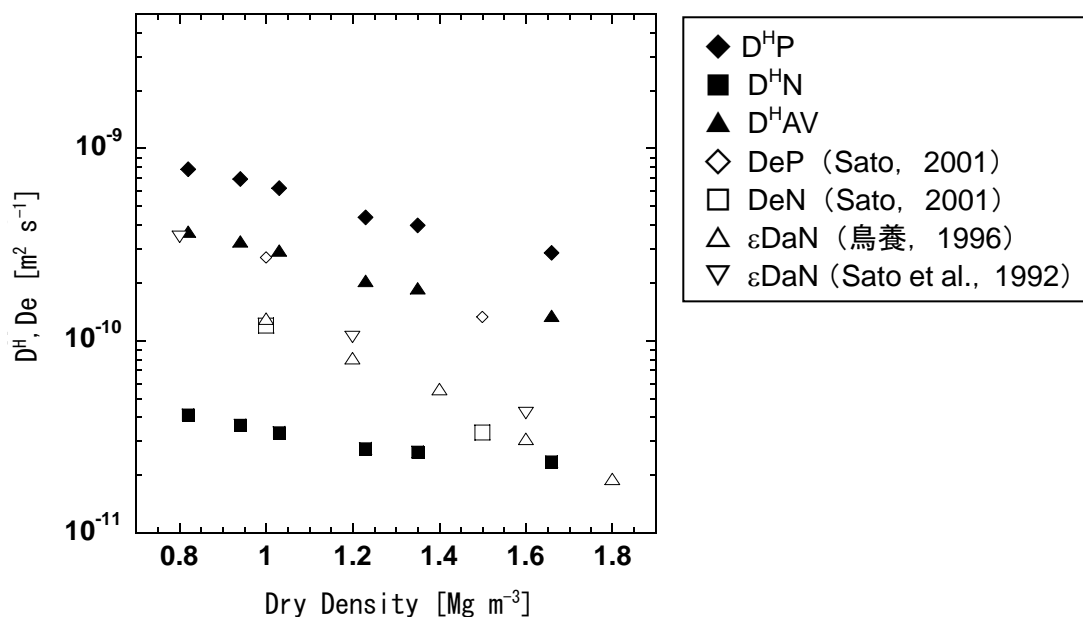


図 3.3.3-6 MD-HA 結合解析による圧縮ベントナイト中の水の拡散係数と実測値の比較

D^H : MD-HA 解析により導出した値

De : 定常拡散試験により得られた De

ϵDa : 非定常拡散試験により得られた Da から $Kd=0$ を仮定して計算した De

記号 P はスメクタイト層に対して平行方向, N はスメクタイト層に対して垂直方向,
AV は P と N の平均値

さらに、実際の緩衝材の鉱物組成や間隙構造を考慮して、石英などのスメクタイトに比べ大きな粒子との混合状態を取り扱うために、多段階の HA 解析プログラムを開発し、水分子の拡散解析を実施している（河村ほか，2002；河村，2005）。

また、緩衝材中のイオンの収着・拡散挙動の理解を目的として、層間陽イオンを Na, K, Ca, Mg, Cs などとした各種イオン型のスメクタイトの MD 計算を行い、スメクタイトの層間膨潤挙動のシミュレーションを行うとともに、層間に存在する水分子と交換性陽イオンの自己拡散係数の導出を行った。さらに、複数の種類の陽イオンを層間に配置したスメクタイトの MD 計算による層間陽イオンの混合の影響についての検討や、結晶端を含むスメクタイト結晶モデルの作成による結晶端の MD 計算における取扱いの検討などを実施した（河村，2005）。

現在までに、適切な間隙構造モデルを構築することで、経験的な値を用いることなく、MD-HA 解析により、物理的な基本定数をもとに緩衝材中の水の拡散係数を予測する技術が確立された。また、収着現象の取扱いについては、HA 解析プログラムの中に微視的吸着項を導入することで、吸着による遅延の効果を表すことが可能となった。しかしながら、具体的な吸着の取扱い方法については今後検討が必要である（河村ほか，2002；河村，2005）。

(d) 岩石中の陰イオンの拡散挙動

安全評価において、岩石中の放射性核種の De は、亀裂性媒体においては亀裂表面から岩盤基質部への核種の拡散挙動に寄与するパラメータであり、核種の遅延や希釈効果に影響を及ぼすパラメータである。ここでは、(a)項と同様に陰イオンの拡散挙動の環境条件依存性を把握することを目的として、岩石試料として凝灰岩および花崗岩に対して拡散試験を実施した（石寺・佐藤，2005a，2005b）。凝灰岩に対しては CO_3^{2-} , Cl⁻, I⁻ についての試験を実施し、溶液は NaOH により pH=12.5 に調整し、パラメータとして NaNO_3 濃度 : 0.01~5 mol dm⁻³ の条件で試験を行った。花崗岩に対しては陰イオンとしては I⁻ のみとし、併せて陽イオンで

ある Cs についても試験を実施した。試験では、岩石試料(直径 30×10 mm もしくは $\times 20$ mm) を拡散セルに設置し、塩濃度を NaCl で調整し濃度範囲を $0.01 \sim 0.5 \text{ mol dm}^{-3}$ とした試験溶液を加え減圧下で含水させた後、トレーサを添加し拡散試験を開始した。所定の期間ごとに試験溶液をサンプリングし、溶液中のトレーサ濃度の測定を行い、得られた破過曲線より De を求めた。

試験の結果を図 3.3.3-7 および 3.3.3-8 に示す。凝灰岩では、De は NaNO_3 濃度が増加するに伴って低下する傾向が見られ、ベントナイトの試験で観察された傾向と異なっている。凝灰岩はスメクタイト含有率が低く、間隙サイズが大きいために、陰イオン排除効果の影響が少なかったことが考えられた。De が低下した原因として、塩濃度の増加に伴う CO_3^{2-} 、 Cl^- 、 I^- の水中の拡散係数の低下が考えられた。また、花崗岩については、NaCl 濃度の増加にともない I^- の De が増加する傾向が認められた。De の増加は、陰イオン排除効果の低下が要因のひとつと考えられるものの、花崗岩の間隙構造なども拡散挙動に影響を及ぼすと考えられるためより詳細に議論する必要がある、現在検討中である。

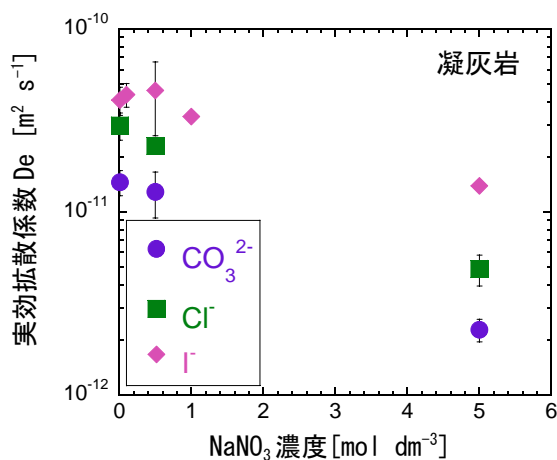


図3.3.3-7 凝灰岩に対する陰イオンの実効拡散係数の NaNO_3 濃度依存性

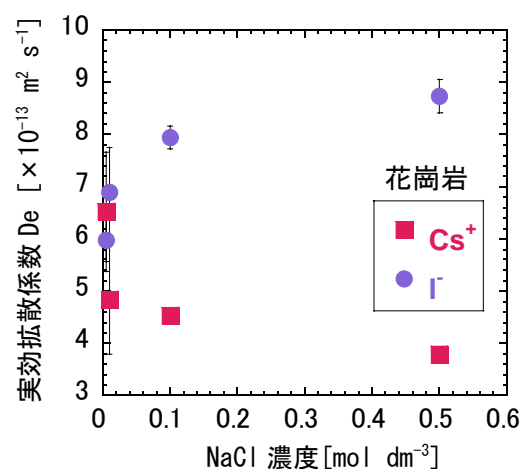


図3.3.3-8 花崗岩に対するCs⁺およびI⁻の実効拡散係数のNaCl濃度依存性

(e) 砂岩に対する Cs の拡散試験から得られる Kd とバッチ式吸着試験から得られる Kd の比較検討

核種が岩石中を移行していく過程においては、核種は造岩鉱物表面と様々な相互作用を起こし、吸脱着反応を繰り返しながら移行していくものと考えられている。岩石中の移行経路となる間隙の大きさは、緩衝材中のそれとは異なり、イオンの大きさと比較し十分に大きいことから、バッチ法によって実測された Kd により遅延を評価することが可能であるとされてきた(朽山ほか, 1998)。このことから、第2次取りまとめの安全評価における Kd は、バッチ法により取得された Kd に基づいて設定された。また、拡散試験から Kd を導出している報告の数はバッチ試験と比較すると著しく少なく、さらに拡散係数を得ることを目的としているために、Kd 評価の観点からはトレーサー濃度などの試験条件が適切ではないものも多い。したがって、バッチ式吸着試験による Kd の報告値を利用せざるを得ないのが現状である。しかしながら、ブロック状の岩石を用いた拡散試験から導出される Kd と粉碎した岩石を用いたバッチ式吸着試験とを単純に比較すると、その値が一致しないことも指摘されており、従来より、その差異の原因を明らかにするための検討を行っている(Tachi et al., 1998)。

ここでは、砂岩を対象として Cs の非定常拡散試験(in-diffusion法)と、バッチ式吸着試験を実施し、それらから得られる Kd の差異について検討を行った(Sato, 2004; 佐藤, 2003b; 佐藤, 2003c)。

試料とした砂岩については、鉱物組成、化学組成、真密度、細孔径分布、細孔内比表面積などの物理化学的基本特性の測定を行った。拡散試験の試料は、直径 30 mm、長さ 50 mm の円筒形岩石の周囲をエポキシ樹脂で覆い固定した後に 2 分割し、円筒試料の片端面のみが露出する状態に整形した。まず、試料を NaCl でイオン強度を調整した溶液に約 200 日間浸漬し含水飽和させた。次に、所定の濃度となるように Cs を添加した溶液に試料を浸漬し拡散試験を開始した。試験は、0.01、および 0.51 mol dm^{-3} の NaCl 溶液に対し、Cs 濃度を 7.5×10^{-5} 、 $1.5 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ のそれぞれ 2 条件で行った。1 から 13 日程度拡散させた後、溶液と接触していた試料の表面をサンドペーパーにより切削し、切削粉から脱離させた Cs 量から岩石中の濃度分布を求め D_a を導出した。 D_a は、NaCl 濃度の影響は顕著ではないが、Cs 濃度の増加に伴って上昇する傾向が認められた。さらに、拡散プロファイルから得られる接液面での固相中の Cs 濃度と溶液中の Cs 濃度から K_d を求めた。 K_d は、Cs 濃度 $7.5 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$ の条件で、 $2.8 \sim 3.9 \times 10^{-3} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-3}$ 、Cs 濃度 $1.5 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ の条件で、 $6.1 \sim 9.1 \times 10^{-4} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-3}$ であった (佐藤, 2003b ; Sato, 2004)。

一方、同一の岩石を粒径 0.355 mm 以下に粉砕した試料を用いて、バッチ式収着試験を実施した。試験は、純水、0.01 および 0.51 mol dm^{-3} の NaCl 溶液に対し、Cs 濃度を 1.5×10^{-6} 、 1.5×10^{-4} 、 $1.5 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ のそれぞれ 3 条件で行った。その結果、 K_d は拡散試験の結果と同様に、ふたつの NaCl 溶液については、その濃度の影響は顕著ではなく、Cs 濃度に対しては、Cs 濃度の増加に従い、 K_d が減少する傾向を示した。これらの結果から、 K_d を Cs 濃度の関数とする吸着等温線として整理した。ただし、純水を用いた試験については、ほかと異なる傾向を示し、これは、固相試料から浸出する K イオンの影響によるものと考察された (佐藤, 2003c)。

バッチ式収着試験の結果から得られた吸着等温線を用いて、拡散試験での Cs 濃度に対する K_d を推定すると、Cs 濃度 7.5×10^{-5} 、 $1.5 \times 10^{-2} \text{ mol dm}^{-3}$ に対し、それぞれ、 $1.53 \times 10^{-2} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-3}$ 、 $4.1 \times 10^{-3} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-3}$ と計算される。この値は、上述の拡散試験から得られる値と比べると大きな値であるが、拡散試験試料と粉砕試料の比表面積がそれぞれ $4.09 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ および $7.6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ であることを考慮し、単位表面積あたりの収着量として補正するとその差は小さくなり、バッチ式収着試験のばらつきなどを考慮すると、ほぼ一致した K_d であると考えられる (佐藤, 2003c)。

本研究では、同一媒体の砂岩を対象として、Cs について、溶液条件とトレーサ濃度条件を制御した試験を実施し、比表面積の違いを補正することで両者の K_d がほぼ一致した。現在、砂岩を用いた Cs の透過拡散試験を実施中であり、 D_a と D_e から求められる K_d についても併せて検討を行う。さらに、ほかの岩種や元素について同様に環境条件を適切に制御した拡散試験と収着試験を実施し、粉砕した試料を用いたバッチ式収着試験から得られる K_d の岩石への適用について妥当性の確認と、安全評価上の K_d 設定にあたっての値の不確実性の検討を行っていくことが重要である。

(f) マトリクス拡散深さに関する室内試験

亀裂性媒体中の核種移行評価において、亀裂表面から基盤基質部への核種の拡散深さの設定は、核種の遅延効果に大きな影響を与えるため重要である。岩石に対する拡散試験については、多くの報告があるが、それらは 5~10 mm 程度の厚さに加工されたディスク状岩石試料による定常拡散試験が一般的であり、マトリクス拡散深さを実験的に調べた例は非常に少ない。このマトリクス拡散の深さについて室内試験から情報を得ることを目的として、試料長さ 200 mm までの円柱状の岩石試料を用いて、I の非定常拡散試験を実施した。

コアボーリング (直径 60 mm) により採取した花崗閃緑岩を長さ 50~200 mm に切断し、含水飽和させた後、片端面を除き樹脂で被覆し、NaI 水溶液中に所定の期間 (50~122 日間) 浸漬した。浸漬期間終了後、岩石試料を厚さ約 1 cm に切断し、各岩石試験片からの浸出 I 量を定量することで、拡散プロファイルを取得した。このプロファイルのフィッティングを行

うことで、見かけの拡散係数 Da を導出した。試験の結果、Iは、試験期間 122 日で 200 mm まで拡散侵入しており、 Da の試料長さ依存性は顕著ではなかった。このことから、岩石試料を用いた本室内試験においては、花崗岩などの母岩未変質部分において、核種が 200 mm 以上にわたり拡散することが確認され、応力が開放されたコアでの結果ではあるが母岩中に深さの制限なく拡散する可能性が示唆された（甲川ほか，2005）。

今後は、現在グリムゼル岩盤試験場における国際共同研究（Phase VI）の中で実施されている長期拡散（LTD）プロジェクトなどを通じて、移流場と接触した未攪乱の岩石表面から基質部への長期の核種の拡散挙動についての理解を深めることを計画している。

(iii) オーバーパック腐食生成物による収着・拡散への影響確認

(a) マグネタイトによる Np の還元に関する研究

Fe(II)など酸化還元に鋭敏な化学種を含有する鉱物に対して放射性核種が収着する場合、対象核種が酸化還元で鋭敏であれば固液界面で酸化還元反応が起こることが指摘されている。このような酸化還元反応は、放射性核種の収着挙動を評価するうえで重要な情報と考えられるが、そのメカニズムは明らかになっていない。そこで、固液界面での酸化還元反応のメカニズムを明らかにすることを目的とした研究を実施した（北村ほか，2004）。

実験はバッチ法を用いて、窒素雰囲気中で行った。II 価鉄含有鉱物であるマグネタイト (Fe_3O_4) 0.3~1.0 g と Np(V) (Np-237) を含む 0.1 mol dm^{-3} の NaCl 水溶液 15~20 ml を混合して pH を 7~8 に調整し、一定期間振とうしながら水溶液中の Np 濃度の定量を行った。この際、温度による反応速度変化を調べるために、室温 (25 °C) と 45 °C において試験を実施した。比較のために、 $FeCl_2$ 試薬により Fe^{2+} 濃度を $1 \times 10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ に調整した 0.1 mol dm^{-3} の NaCl 水溶液中に Np(V) を添加する同様の実験を行い、酸化還元挙動の差異を調べた。

その結果、溶存 Np 濃度が経過時間とともに減少していくが、その時間変化に液固比および温度の依存性が見られることが分かった。本試験条件では、Np(V) が還元されて Np(IV) になると、 $NpO_2(am)$ の溶解度が低い ($10^{-8} \text{ mol dm}^{-3}$ 以下) ことから溶存 Np 濃度が低下する。本研究ではマグネタイトに収着した Np(V) と、 $NpO_2(am)$ として沈殿したものを区別することはできないが、一般に Np(V) の収着はそれほど大きくないこと、反応が液固比の低い（すなわち固相が多い）試料ほど早く進んでいることから、マグネタイト表面での Np(IV) の沈殿あるいは還元された Np(IV) の収着が生じたものと考えられる。

(b) Np の拡散に及ぼす腐食生成物の影響に関する研究

鉄腐食物共存条件下と非共存条件下での Np の拡散試験を行った。ベントナイトは拡散カラムに圧縮充填し、還元条件を維持するために $Na_2S_2O_4$ を加えた水溶液でベントナイトを含水飽和させた。その後、鉄腐食生成物非共存下では、Np をベントナイト試料片面にそのまま塗布し拡散させ、鉄腐食生成物共存下では、腐食炭素鋼をベントナイト試料片面に密着させて腐食生成物を拡散させた後、Np を塗布し、腐食生成物存在下で Np を拡散させた。試験は非定常拡散法で行い、一定時間拡散させた後ベントナイト試料をスライスし、ベントナイト中の鉄および Np の濃度分布を調べることで、見かけの拡散係数 Da を求めた。

その結果、ベントナイト中の Np の濃度プロファイルには、速い移行挙動を示す部分と、遅い移行挙動を示す部分が存在することが確認された。速い移行挙動を示す部分から導出される Da は $10^{-11} \sim 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 程度であり、遅い移行挙動を示す部分では $10^{-14} \sim 10^{-15} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 程度となった。スライス片の溶媒抽出による価数の同定結果などから、速い移行挙動を示す部分は V 価の Np の拡散によるもの、遅い部分は IV 価の Np の拡散によるものと推測された。また、腐食生成物共存系における Np の拡散挙動は、遅い移行挙動を示す Np の割合が非共存系に比べて増加していた。このことから、腐食生成物が存在すると Np は IV 価に還元され、 Da が 2 桁ほど低下するものと示唆される（有馬ほか，2004）。

これらの結果は、実際の処分システムを考慮した長期にわたる核種移行評価において、緩衝材中および内側境界での Np の溶解度を Np(IV) の固相を溶解度制限固相として与えること、および緩衝材間隙水中では Np(IV) として存在すると仮定することの妥当性を改めて支持するものである。

(3) 結論

第 2 次取りまとめ以降の研究により、主に以下の成果が得られた。

・ 収着機構の理解とそれに基づく Kd 設定手法の検討

炭酸共存下での Np の収着試験を実施し、炭酸濃度の変化に伴う Kd の変化を、溶存化学種ごとに Kd を与えることで説明可能であることを示した。

さらに、モデリングチームとして参加した OECD/NEA 収着プロジェクトにおいては、上述の溶存化学種ごとに Kd を与えるモデルよりも詳細なモデルとして、固相の収着サイト特性やイオン交換、表面錯体といった反応機構を考慮した熱力学的収着モデルの安全評価への適用性が検討され、熱力学的収着モデルは、Kd 実験値の傾向が再現でき、Kd に対する影響因子の定量化が可能であることなどから、安全評価における Kd の設定の補完や感度解析的な利用が推奨されるという国際的な認識が共有された。

このようなモデル化の試みは、現状では適用可能な元素や固相に制限はあるものの、環境条件に対応した Kd の推定および環境条件の変化に対する感度の予測を可能とするものであり、安全評価における Kd 設定の信頼性の向上および値の不確実性の推定手法の確立に資するものである。

一方、実際の地質環境を対象とした Kd 取得とそのデータの解釈、モデル化の試みとして、幌延地域の堆積岩を対象として、Cs および Se のバッチ式収着試験を実施し、Cs については、イライトを収着媒体としたイオン交換モデルにより、試験結果をほぼ説明可能であることを示した。また、Se については、ボーリング孔から採取した地下水と、試薬により調製した模擬地下水で異なる収着挙動を示し、地下水中に存在する天然有機物が収着挙動に影響を与えていることが示唆された。これらのことから、実際の地質環境を対象とした分配係数の取得および試験にあたっては、それぞれの元素の特性を考慮して、収着に影響を及ぼす環境因子を適切に制御することの重要性が改めて認識された。

・ 拡散機構の理解とそれに基づく De 設定手法の検討

緩衝材中の拡散係数については、陰イオンの塩濃度依存性に関するデータが蓄積されるとともに、その傾向から微視的拡散経路などに関する考察が行われ、塩濃度の上昇とともに陰イオン排除効果が低下し、移行に寄与する有効間隙率が増加することが示された。さらに、イオンの種類や溶液条件、ケイ砂混合率などを変化させた各種条件で、温度を変化させた試験を実施し、活性化エネルギーを求めることで、移行メカニズムの考察を行った。その結果、層間、スメクタイト表面、粒子間間隙など複数の移行経路が存在し、条件に依存して変化していることが示唆された。さらに、計算科学的なアプローチとして、スメクタイト中の微視的な特性に基づく拡散シミュレーションを行い、水（トリチウム水）の移行挙動を説明することができた。

岩石中の拡散係数についても、陰イオンの塩濃度依存性に関するデータが蓄積された。また、砂岩を対象として、拡散試験から得られる Kd とバッチ式収着試験から得られる Kd を比較し、溶液条件などが一致していれば、比表面積の補正によりそれらはほぼ一致することが示された。また、岩石試料を用いた室内試験から、花崗岩の未変質部分への核種の拡散が 200 mm 以上にわたり起こる可能性が示唆された。

・ オーバーパック腐食生成物による収着・拡散への影響確認

実際の処分システムで想定される鉄腐食生成物の存在により、酸化還元鋭敏な元素（これまでの試験では Np に着目）が還元状態になることを実験的に確認した。このことにより、従来の還元状態を想定した核種移行パラメータの設定が妥当であることが示された。

(4) 今後の課題

収着現象については、熱力学的収着モデルのさらなる検討を行い、実際の地質環境を対象として K_d を設定する際のデータ取得方法、 K_d の設定のモデルによる補完手法、および設定値の不確実性の推定方法の開発を行う。

拡散については、緩衝材ではイオンの形態の違いなどによる移行経路の把握とモデル化を行う。さらに、そのような現象理解を通じて、バッチ式収着試験で得られる K_d と拡散試験から導出される K_d の整合性に関する考察を行う。岩石についても、 D_e に影響を与える環境因子を明確にするとともに、バッチ式収着試験で得られる K_d と拡散試験から導出される K_d の整合性について、多様な岩種や元素を対象とした検討を継続する。

以上を通じて、実際の地質環境を対象として K_d 、 D_e などのパラメータを設定する際のデータ取得方法、パラメータの設定のモデルによる補完手法、および設定値の不確実性の推定方法の開発を行う。

マトリクス拡散深さについては、原位置での長期試験を中心に、移流場と接触した岩石表面から基質部への長期の核種の拡散挙動に関するデータ取得や、微視的移行経路の観察による現象理解を計画している。

さらに、現在まで定量的な取扱いが困難であり、安全評価上は保守的に無視されてきた不可逆的な収着挙動に対する現象理解と安全評価上の取扱い方法についても検討を行う。

3.4 コロイド，有機物，微生物の影響評価モデルの開発

3.4.1 コロイドの影響評価モデルの開発

(1) はじめに

地下深部の処分環境下には，緩衝材であるベントナイトから生成するベントナイトコロイドや，地下水中に含まれる天然のコロイドが存在することが考えられる。これらのコロイドが放射性核種と相互作用を起こし，地質媒体への収着などの移行遅延効果を減少させ，放射性核種の移行挙動に影響を及ぼす可能性は，1980年頃から指摘されてきた（たとえば，Sheppard et al., 1979）。核種移行に及ぼすコロイドの影響が顕在化する条件は，図 3.4.1-1 のような図を用いて説明することができる（Miller et al., 2000）。

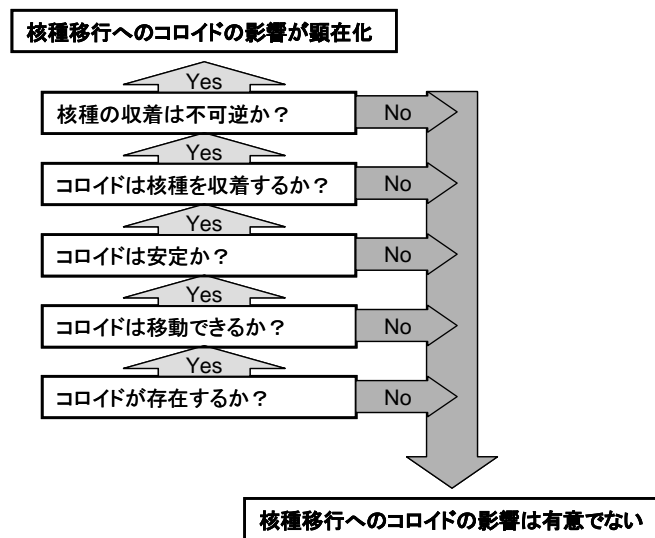


図 3.4.1-1 コロイド影響が顕在化する条件の考え方
(Miller et al. (2000) をもとに作成)

これは，次の 5 つの条件が全て満たされた場合にのみ，コロイドの影響が顕在化することを表している。

- ・コロイドが存在する（存在可能性，濃度）
- ・コロイドは移動することができる（移行性）
- ・コロイドは安定である（安定性）
- ・コロイドは核種収着性を有する（収着性）
- ・コロイドへの核種収着は不可逆である（不可逆性）

換言すれば，コロイドの影響評価においては，括弧内に示したこれら5つのコロイドの特性を評価することが重要といえる。さらに，コロイドの影響を具体的に評価するためには，その移行挙動や核種の収着性をモデル化する必要がある。そのため，各国においても，処分環境下において共存する可能性のあるコロイドについて，これら5つの特性評価や，コロイドに収着された核種の移行挙動のモデル化などの研究が進められてきた。1990年代後半には，これらの成果に基づき，コロイドの影響を直接的に調べるため，カナダ，スイスの地下研究施設において，環境条件を制御した下で核種およびコロイドを岩盤に注入し，それらの移行挙動を調べる原位置試験が，国際共同研究プロジェクトとして行われている（小川ほか，2001；Möri et al., 2003）。また，米国ネバダ核実験場付近の井戸水中の放射性核種測定結果のように，コロイドを形成することにより放射性核種の移行が促進される可能性を示す具体例（Kersting et al., 1999）も報告されていることから，各国においても，地層の種類や環境条件によってはコロイド影響を考慮することが重要であると認識されつつある。

わが国においても、上述の5つの特性評価とコロイドへの核種の収着性・不可逆性およびコロイドの移行性を考慮したコロイド影響評価モデルの開発が進められてきた。これらの特性データおよびモデルは、コロイドの影響が顕在化する条件を明らかにし、安全評価においてコロイドの影響を考慮するか否かを定めるために用いられる。第2次取りまとめにおいては、特性評価およびモデル開発の成果について、以下のように報告している。

- ・岩盤中の地下水では、緩衝材表面から生成するベントナイトコロイドや天然コロイドが核種移行に影響を与える可能性がある。このうちベントナイトコロイドは、地下水流速が $10^{-5} \sim 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ という極めて速い環境でない限り、生成しにくい。（存在可能性、濃度）
- ・コロイドは、緩衝材の微細な間隙構造にトラップされるフィルター効果により、緩衝材中を移行できない。また、亀裂によるフィルター効果により、移行が抑制されると推察されるが、現時点ではどの程度効果があるか、十分な知見は得られていない。（移行性）
- ・以上の知見に基づき、核種のコロイドへの収着を瞬時／線形／可逆と仮定し、コロイドのフィルター効果およびマトリクス拡散を保守的に考慮しない簡易なモデルを用いて、コロイド濃度を $10^{-3} \text{ kg m}^{-3}$ 、核種のコロイドへの分配係数を $1,000 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ として線量を評価したところ、最大線量はレファレンスケースの数倍程度であった。（モデル化）

このように、核種移行に及ぼすコロイドの影響評価が、基本的なモデルに基づき実施されているものの、重要な特性である地下水中的コロイドの濃度、安定性、核種のコロイドへの収着性、不可逆性などに関する実測データは限られているのが現状である。また、緩衝材や岩盤が有するコロイドのフィルター効果などの移行性についても、効果の定量化が必要である。さらに、コロイドの影響評価モデルについては、亀裂性あるいは多孔質といった岩盤の特性を考慮するとともに、核種収着の不可逆性やフィルター効果などのコロイドの移行性を考慮できるモデルの作成が望まれる。

以上のような課題を踏まえ、以下のように研究課題を設定した。

(i) コロイドの濃度、安定性および移行性の評価

緩衝材内側で生成するコロイド、緩衝材外側で生成するコロイドおよび地下水中に存在する天然コロイドを対象として、モデル計算、室内実験、坑道などで採取した地下水を対象とした実験を行い、濃度、安定性、移行性を評価し、特性評価手法の整備およびコロイド濃度などのコロイド影響評価モデルを用いた計算の入力となるデータの取得を行う。

(ii) コロイドへの核種収着性およびその不可逆性の評価

コロイドの影響評価上重要な核種（Cs, IV 価アクチノイド, III 価アクチノイドおよび IV 価 Tc）を対象とし、収着実験により分配係数や収着速度などのコロイドに対する収着性を評価するとともに、脱着実験を行って脱着時の分配係数や脱着速度を取得し、収着時のデータと比較することにより、収着の不可逆性を評価する。これらの収着性、不可逆性に関するデータは、コロイド影響評価モデルを用いた計算の入力として用いられるものである。コロイドとしてはベントナイトコロイドおよび地下水中に存在する天然コロイドを対象とする。また、ベントナイトコロイドと、コロイドより粒径が大きい粉末状ベントナイトに対する分配係数の違いを調べることにより、既存の JNC-SDB (2.2 節参照) 内の粉末状ベントナイトに対する分配係数をベントナイトコロイドに適用する手法を確立する。

(iii) コロイド影響評価モデルの開発

まず、安全評価上影響が大きいと考えられる核種の収着・脱離速度を考慮するとともに、亀裂性媒体と多孔質媒体の両方を対象とできるコロイド影響評価モデルを開発する。次に、原位置でのコロイド・核種移行試験結果を用いて、開発したコロイド影響評価モデルを検証し、その適用性を確認する。さらに、コロイドのフィルター効果に関する知見に基づいて、フィルター効果まで考慮したコロイド影響評価モデルを開発する。

なお、第2次取りまとめ以降の地層処分の具体化に向けた動きの中でも、本分野の重要性

が認識されている。たとえば、事業の実施主体は、今後、段階的進展に応じて処分場を最適化していくためには、サイト環境条件とそれに応じた処分場のデザインの特徴を反映した安全評価モデル、データセットを作成していく必要がある（原子力発電環境整備機構，2004）としており、安全規制側からも、コロイドなどの影響について、概要調査地区選定段階以降の段階で考慮すべき環境要件の検討の際にその取扱いを審議する（原子力安全委員会 特定放射性廃棄物処分安全調査会，2002），（放射性核種の地下水による移行現象について）母岩領域における各 FEP の相関関係が核種移行に与える影響を十分定量的に把握するには至っておらず、まずモデル化を進めるとともに、パラメータとして入力すべきデータの取得を進める必要があり、重要な研究分野であって早急に推進すべきもの（総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会，2003）と指摘されている。コロイドの影響評価に関しては、これらのニーズを考慮しデータの取得およびモデル化を進める必要があるといえる。

(2) 研究内容

(i) コロイドの濃度、安定性および移行性の評価

安全評価で考慮すべきコロイドとしては、緩衝材の内側（廃棄体側）と外側（掘削影響領域側）で生成する人工バリア起源のコロイド、および天然バリア中の地下水中に元々存在するコロイドが考えられる。このうち、緩衝材の内側で生成する人工バリア起源のコロイドについては、緩衝材のフィルター効果によりコロイドが緩衝材にトラップされれば、その核種移行に及ぼす影響を考慮する必要がなくなる。これは、緩衝材中の核種移行評価において、溶存化学種の移行挙動のみを考慮すればよいこと（たとえば、コロイドの影響を排除し、溶存成分のみの濃度に基づき算出された熱力学データから計算される溶解度を濃度上限とできること）を意味する。第2次取りまとめまでの検討では、粒径が15 nm の金コロイドを用いて、緩衝材がフィルター効果を有することを直接実験により確認した。第2次取りまとめ以降の検討では、粒子の大きさが1~1,000 nm と定義されるコロイドのうち、最も小さい1 nm の粒子をろ過することが可能なベントナイト系緩衝材の仕様を検討した。緩衝材のフィルター効果は、緩衝材中の間隙とコロイドの大小関係に規定されるものとして、図3.4.1-2 に示す均質化モデル（市川ほか，1999；鈴木ほか，2001）により、間隙が1 nm となる緩衝材中の有効粘土密度を計算した。この結果、間隙の大きさが1 nm 以下となり、最小の大きさに定義される1 nm のコロイド粒子までをろ過するためには、緩衝材の有効粘土密度は1.5 Mg m⁻³ 以上とする必要があると見積もられた（黒澤，2005）。これは、緩衝材の内側で生成する人工バリア起源のコロイドの安全評価上の取扱いを検討する際すなわち緩衝材の仕様を決定する際の判断材料のひとつになり得ると考える。

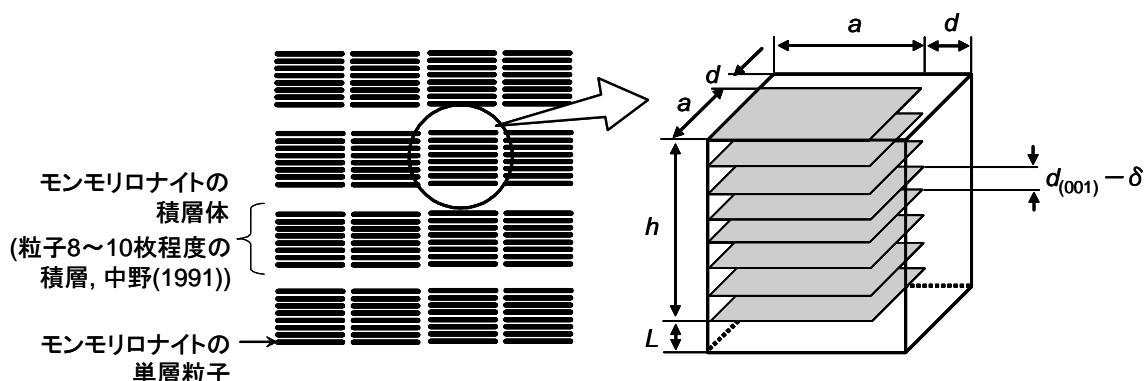


図 3.4.1-2 ベントナイト間隙推定のための均質化モデルの概要図（鈴木ほか，2001）

このほか、コロイド化学の基礎理論である DLVO 理論 (Kruyt, 1963) を適用して、コロイドの緩衝材への収着のしやすさを推定した。図 3.4.1-3 に、緩衝材材料であるベントナイトとコロイド間のポテンシャル曲線を示す。ポテンシャルの大きさはゼロ以下であり、この場合には van der Waals 引力に従ってコロイドはベントナイトに収着しやすいことが推測され、コロイドは緩衝材中を物理的因子のみならず化学的にも移行しにくいことが示唆される (黒澤, 2005)。なお、DLVO 理論に関しては現実の系を理想化して評価していること、また理論の適用限界があるが、ここでは表面が負 (-5~-50 mV) に帯電するコロイド粒子とベントナイト粒子のヘテロ凝集に関する評価式を適用させて粒子間ポテンシャルを計算し、両者の収着性を検討した。

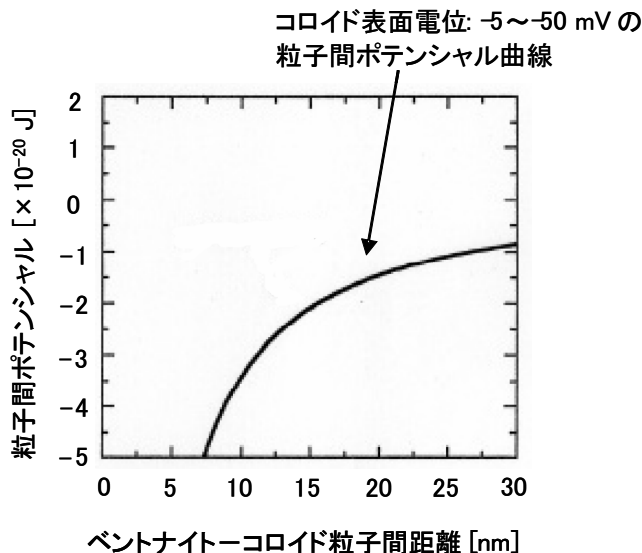


図 3.4.1-3 ベントナイトとコロイド間の粒子間ポテンシャル

一方、緩衝材外側では、天然コロイドのほか、緩衝材から生成するベントナイトコロイドが存在する可能性がある。そこで、ベントナイト粒子の熱運動について検討し、その熱運動による粒子の地下水中之への分散を考察した。ベントナイト粒子の熱運動に関しては、DLVO 理論により粒子の熱エネルギーと同程度とされる粒子間ポテンシャルの第 2 極小を見積もり評価した (黒澤, 2005)。第 2 極小に関しては、粒子の外圍溶液中のイオン濃度が極めて希薄な場合でしか発現しないことから、ここでは $1 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ の濃度条件を設定することにより見積もった。しかし、イオン濃度が高い場合には、DLVO 理論による予測では粒子同士は不可逆に凝集することにより地下水でコロイドとして安定に存在しにくくなると考えられる。このことは、ベントナイト鉱床を対象とした地下水コロイドに関する事例調査からも裏付けられる。すなわち、図 3.4.1-4 に示すように、ベントナイト鉱床で採取された地下水中には、ベントナイトコロイドの存在が認められていない (Kuno et al., 2002)。なお、図中の C および D 地点で採取された地下水では、採取後 2 週間までは浮遊するコロイド粒子の存在を確認できたが、さらに時間を経過した後の濃度分析からは浮遊するコロイド粒子は認められなかった。このことから、採水時の擾乱の影響によって浮遊した粒子である可能性が高い。ただし、海外における最近の研究例をみると、たとえばグリムゼル岩盤試験場 (スイス) の花崗岩中の透水性亀裂を利用したコロイドと核種の原位置移行試験 (CRR: Colloid and Radionuclide Retardation) プロジェクトでは、ベントナイトコロイドの安定性が評価され、イオン強度が $10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ 以下の地下水ではコロイドとして安定に存在することも報告されている (Möri et al., 2003)。したがって、イオン強度によっては、安全評価においてベントナイトコロイドが地下水で安定に存在するとして検討が必要になると考えられる。

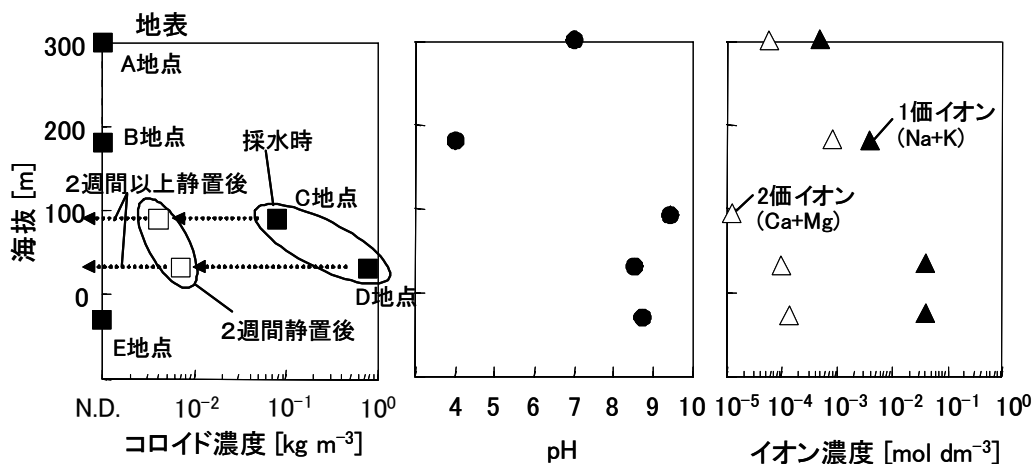


図 3.4.1-4 ベントナイト鉱床の地下水中のコロイド濃度、pH およびイオン濃度

また、地下水中には元々コロイドが存在する。このため、第2次取りまとめ以降、地下水中的コロイドに関する濃度、安定性および移行性について研究を行ってきた。まず、現存する旧鉱山のアクセス坑道（横坑）を利用して地下水を採取し、地下水中的コロイドの濃度、安定性評価などを実施した（上田・黒澤，2002）。一例として、周辺の地質が古期堆積岩系（主に砂岩，頁岩，チャート）である坑道（かぶり厚さ：数～数十 m）内で湧出する地下水を採取し、地下水中的コロイド成分，濃度および粒径分布を測定した。コロイド成分については，採取した地下水を Cu（銅）製のマイクログリッドですくい，TEM-EDX により定性分析を実施した。コロイドの濃度および粒径分布については，孔径の異なるフィルタを用いて地下水を分画処理し，各フィルタを通過した地下水の成分濃度を ICP-MS，TOC 計などを用いて測定することにより評価した。

結果を図 3.4.1-5 に示す。地下水中には Mg, Al, Si, Ca が一般的にコロイドとして定義される粒径範囲（>1 nm）で $10^{-2} \sim 10^{-1} \text{ kg m}^{-3}$ の濃度で認められ，またコロイド粒径を有する有機物がそれら無機コロイドよりも多く $10^{-2} \text{ kg m}^{-3}$ オーダーの濃度で存在することが認められた。この際，コロイド成分濃度は時間経過とともに変化することが認められており，地下水中に元々存在するコロイドの分析評価の方法や地下水試料の保存方法などに注意する必要がある。

また，旧鉱山坑道から採取した地下水を用いて，初期 Am 濃度をパラメータとして，地下水中的コロイドに対する Am のバッチ式収着試験を実施した（上田・黒澤，2002）。試験では Am の初期濃度を $1.6 \times 10^{-10} \sim 3.3 \times 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$ の濃度で調整した。試験期間は 7 日間とし，試験後は試験溶液（地下水）を固液分離した場合としない場合のそれぞれでの Am 濃度を液体シンチレーションカウンタを用いて測定し，測定結果から Am の地下水コロイドへの分配係数を算出した。結果を図 3.4.1-6 に示す。この結果から，Am が地下水中的コロイドに有意に収着することが認められるが，分配係数のバラツキや濃度依存性などに関しては，今後議論が必要である。

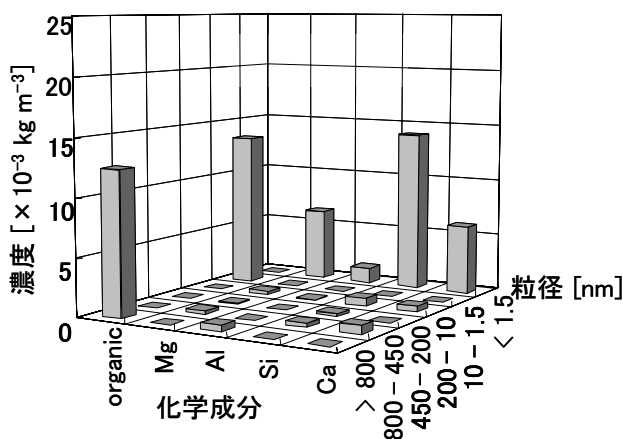


図 3.4.1-5 地下水中のコロイド成分濃度の測定結果の一例

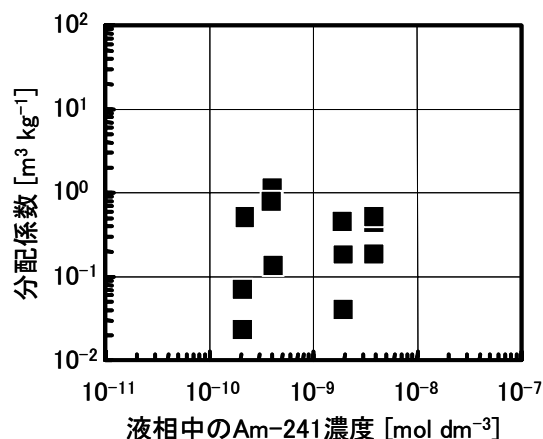


図 3.4.1-6 Amの地下水コロイドへの分配係数

(ii) コロイドへの核種吸着性およびその不可逆性の評価

コロイドに対する核種の吸着性およびその不可逆性を調べるため、クニピア F から調製したベントナイトコロイドを対象として、Cs の吸着試験および脱着試験を行い、分配係数、吸着速度および脱着速度に関するデータを取得した（飯島ほか，2004a）。ここで、吸着の不可逆性とは、吸着された核種が脱着されるべき条件でも脱着されなくなることであり、脱着試験において得られた核種の脱着量あるいは分配係数が、吸着分配平衡から予測される値よりそれぞれ少なくなるあるいは大きくなることにより、不可逆性の存在を確認することができる。ベントナイトコロイドは次のように調製した。まず、 $3 \times 10^{-4} \text{ mol dm}^{-3}$ の NaCl 溶液中に、固液比 2 kg m^{-3} でクニピア F を分散させる。1 ヶ月静置後、溶液の上澄みを分取し、孔径 $0.8 \mu\text{m}$ のメンブランフィルターでろ過して得られたろ液をベントナイトコロイド溶液とした。このベントナイトコロイド溶液を用い、初期コロイド濃度 1.02 kg m^{-3} 、初期 Cs 濃度 $10^{-4} \sim 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$ に調整し、一定期間経過後、溶液中および分画分子量 10,000 で限外ろ過後のろ液中の Cs 濃度を測定して、分配係数を求めた。得られた分配係数は、粉末状のベントナイトに対する分配係数と比較した。

結果を図 3.4.1-7 に示す。分配係数として約 $20 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ の値が得られた。平衡時の Cs 濃度 $10^{-11} \sim 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$ 、吸着期間 1～115 日、pH 7～8.5 の間では、分配係数のこれらに対する依存性は認められなかった。ベントナイトコロイドは、共存イオン濃度などの溶液条件を考慮しても、JNC-SDB (2.2 節参照) 中の粉末状ベントナイトに対する Cs の分配係数より大きな分配係数を示すことが分かった。また、吸着は 1 日以内で平衡に達することが分かった。

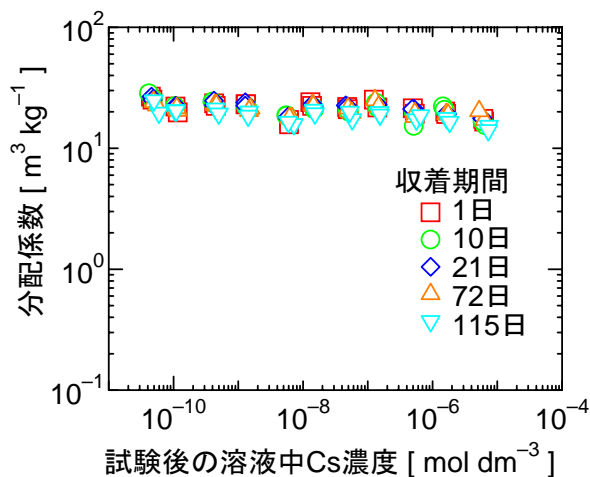


図 3.4.1-7 ベントナイトコロイドへの Cs 分配係数

次に、上記の Cs 収着試験後の試験溶液を用いてバッチ式脱着試験を実施し、収着の不可逆性を調べた（飯島ほか，2004a）。ベントナイトコロイド溶液と同じ組成で、コロイドを含まない溶液を脱着液とし、ここに収着試験溶液の一部を添加し、収着試験と同様の方法で Cs 濃度を測定した。

脱着試験後のコロイドへの Cs 分配係数を図 3.4.1-8 に示す。得られた分配係数は、脱離試験後の溶液中 Na 濃度がわずかに低いことを考慮すれば、いずれの Cs 濃度領域においても同程度であるといえる。また、Cs の収着を可逆と仮定し、イオン交換モデルに基づき予測した分配係数と概ねよい一致を示した。これは、このような広い濃度領域にわたり Cs のベントナイトコロイドへの収着がほぼ可逆であることを示している。

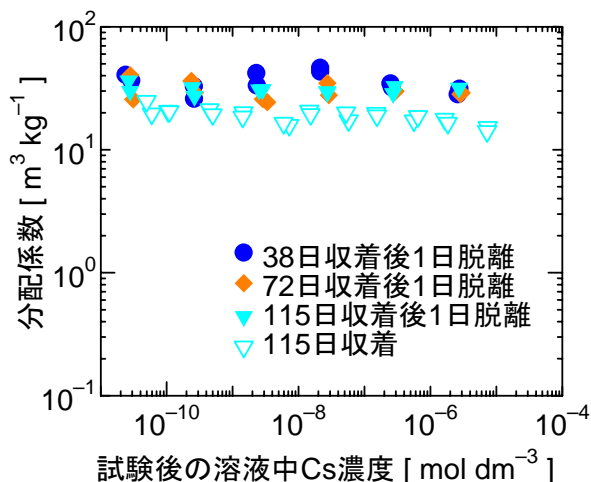


図 3.4.1-8 脱着試験後のベントナイトコロイドへの Cs 分配係数

ベントナイトコロイドの形状を透過型電子顕微鏡（TEM）で観察し、ベントナイト形状が及ぼす分配係数への影響を考察した（飯島ほか，2004a）。ベントナイトコロイド粒子断面の TEM 写真の一例を図 3.4.1-9 に示す。



図 3.4.1-9 ベントナイトコロイドの結晶断面の TEM 写真

図 3.4.1-9 の写真に認められる平行に並んだ数本の線は、ベントナイトコロイド粒子を構成するスメクタイト結晶の層状構造である。写真から、コロイド粒子は、結晶の積層数が数層程度であることが、分かった。一方、孔径の異なるフィルターでろ過し、ろ液中の元素濃度を分析することによりコロイドの粒径分布を求めたところ、コロイド粒子の大部分は 200 nm 以上の大きさを持つことが分かった。したがって、ベントナイトコロイド粒子は、結晶の積層数が少なく、粒径が大きい、薄片状の形状であることが分かった。先に述べたように、ベントナイトコロイドは、コロイドより粒径の大きい粉末状のベントナイトより大きな分配係数を示したが、この原因のひとつとして、このような形状の違いが考えられる。つまり、一

般に、粒径が小さくなると、単位重量当たりの表面積が大きくなることから、コロイドのような微粒子では表面の効果が大きくなる。この表面積の増加が収着能力、すなわち分配係数の増加につながった可能性がある。しかし、ベントナイトでは、表面だけでなく層間にも収着サイトを持ち、ベントナイトコロイドが生成する際の表面積の増加は、今まで層間だった部分が表面になることによる増加分が大部分を占めると考えられるため、コロイドになったことによって、収着サイトが急激に増加することは考えにくい。今後、他の核種の収着挙動も併せて考察し、分配係数に及ぼす粒径の影響を評価していく。

(iii) コロイド影響評価モデルの開発

核種移行に及ぼすコロイドの影響評価に関して、第2次取りまとめまでは、処分環境下で存在するコロイドに核種が瞬時に平衡収着するものと仮定したモデルを用いて核種移行を評価した。しかし、核種とコロイドの収着に関して、たとえば脱着速度が速い場合には、核種はコロイドの移行挙動に従わずに、溶存化学種として亀裂表面への収着や岩石基質部へのマトリクス拡散により移行遅延されるものと考えられる。また、脱着速度が遅い場合には、コロイドが核種の移行媒体となることから、コロイドの移行挙動に従うことが考えられる。したがって、本モデル開発では、これまでの核種-コロイドの瞬時平衡の収着を仮定したモデルに対して、核種-コロイドの収着を速度論的に取扱うことが可能なモデルの開発を進めてきた。その結果、核種-コロイドの収着に関して瞬時平衡および収脱着速度の影響を考慮できる核種移行計算コード COLFRAC-MRL を整備した(上田・久野, 2003)。COLFRAC-MRL は、亀裂性媒体のみを対象とした既存の計算コード COLFRAC (Ibaraki and Sudicky, 1995a, 1995b) を、多孔質媒体も扱い得るように拡張した計算コードである。なお、COLFRAC-MRL のもととなった COLFRAC に関しては、実験室およびフィールドにおける核種およびコロイドの移行実験とそのモデル解析の比較によってモデルの検証が行われた(黒澤ほか, 2004a, 2004b ; Kurosawa et al., 2004)。

実験室における核種およびコロイド移行実験では、粘土系コロイド共存下での核種の亀裂中移行実験を行い、核種移行に及ぼす核種-コロイドの収脱着速度の影響について検討した。実験では、収着性核種として Cs を $1.0 \times 10^{-6} \text{ kg m}^{-3}$ ($7.5 \times 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$) の濃度で、コロイドとしてベントナイトコロイドを $3.5 \times 10^{-3} \text{ kg m}^{-3}$ の濃度で使用した。また、人工的に単一亀裂(寸法: 亀裂長 50 mm × 亀裂幅 50 mm × 亀裂開口幅 0.5 mm) を加工した花崗岩をカラムに充填して用いた。移行実験の結果については、上述した核種移行計算コード COLFRAC-MRL を用いて、瞬時平衡の収着を考える場合と速度論を考えて収脱着速度を考慮する場合について解析した。その結果を図 3.4.1-10 に示す。核種-コロイドの収着を瞬時平衡とするか速度論とするかにより解析結果(破過曲線)は異なり、実験結果を説明するためには速度論すなわち収脱着速度を考慮することが重要であることが示唆された(黒澤ほか, 2004a ; Kurosawa et al., 2004)。さらに、本実験では、Cs 単体では移行率は 1.0 に達したものの、コロイド共存下では、亀裂表面でコロイドが物理的あるいは化学的な因子によるフィルター効果により移行が抑制されることに伴い、コロイドに収着した Cs が亀裂内に留まることが認められた(図 3.4.1-10 で濃度比 C/C_0 は 1.0 に達しない)。このような亀裂内でのコロイドのフィルター効果は、本実験以外にもしばしば認められている現象である(たとえば、Chinju et al., 2001)。そこで、コロイドの一定割合が亀裂内でろ過されるとした再解析を行った。その結果、解析結果は実験結果とより整合することが示された(図 3.4-10 参照)。しかしながら、コロイドの亀裂内でのフィルター効果に関しては、そのメカニズムが明らかになっていないことも多く、コロイドの影響評価モデルの高度化にあたっては、コロイドのフィルター効果について理論的に評価していくことが必要であると考えられる。

また、サイクル機構では、1998年よりスイス放射性廃棄物管理協同組合(Nagra)との共同研究の一環として、グリムゼル岩盤試験場の花崗岩中の透水性亀裂を利用したコロイドと核種の原位置移行試験(CRR)プロジェクト(Möri et al., 2003)に参画した。本研究では、

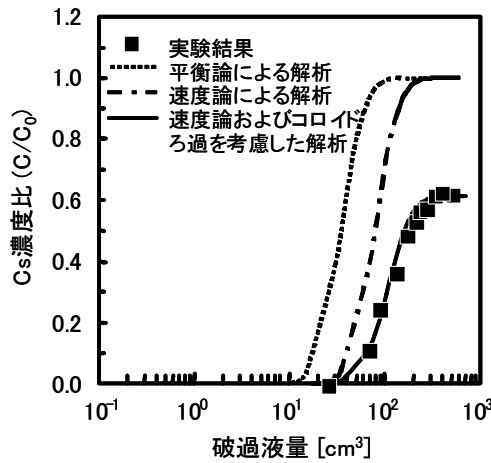


図 3.4.1-10 粘土系コロイド共存下での核種の亀裂中移行実験の結果と解析結果

COLFRAC-MRL を使用して、実験対象亀裂での核種移行解析を実施した。その結果を図 3.4.1-11 に示す。Am-243 の地下水コロイドへの収着について、瞬時平衡を考えた場合と速度論すなわち収脱着速度を考慮した場合の解析結果を比較すると、速度論を考慮した結果が実験結果とより整合することが認められた (黒澤ほか, 2004b)。また、この実験では、ベントナイトコロイド $2 \times 10^{-2} \text{ kg m}^{-3}$ を加えた核種移行実験も行われたが、この結果においては、ベントナイトコロイドを加えたことによって実験系内のコロイド濃度が高くなったことにより、核種移行率が増加したことが認められた (Möri et al., 2003 ; 黒澤ほか, 2004b)。なお、COLFRAC では、核種-コロイドの収着はヘンリー型収着を仮定しているが、この型の収着はコロイド表面の約 10%以下が核種で覆われる程度の収着を扱う。このため、今後は実際に起こりうる収着型について把握するとともに、不可逆収着も含め、収着型に応じたモデルの検討が必要と考えられる。

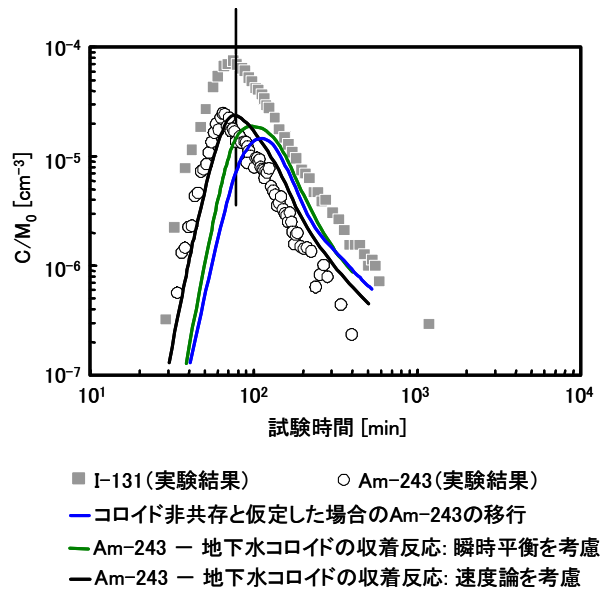


図 3.4.1-11 フィールド実験に関する核種移行解析結果の一例

さらに、COLFRAC-MRL を用いて、コロイドの影響を考慮した天然バリア中での核種移行評価を第 2 次取りまとめの安全評価の条件 (核種移行距離 : 100 m, 評価期間 : 10^7 年) のもとで行い、核種-コロイドの収脱着速度を考慮するか否かにより結果が有意に異なる特異な環境条件を検討した。図 3.4.1-12(a)および(b)に、コロイド濃度の条件を 10^{-4} , 10^{-3} , $10^{-2} \text{ kg m}^{-3}$ に設定して、Am(III)の地下水コロイドへの収着を瞬時平衡とした場合と収脱着速度を考慮した場合での解析結果を示す。この際、COLFRAC-MRL による解析では、収着反応の進

行方向（収着時）の速度係数 α および反応の逆方向（脱着時）の速度係数 β を、 $\alpha=2.9 \times 10^6 \text{ day}^{-1}$ 、 $\beta=2.2 \text{ kg m}^{-3} \text{ day}^{-1}$ と設定した。これらの値に関しては、前述した CRR プロジェクトの中で行われたバッチ式収着試験の結果から、実験系における核種-コロイドの収着についてヘンリー型収着を仮定して導出した。また、地下水流速の条件としては、第2次取りまとめにおいて断層中の流速として設定した 50 m y^{-1} を考慮した。なお、COLFRAC-MRL による解析評価では核種の半減期に関しては考慮されていない。本解析の結果、このような条件のもとでは、上記いずれのコロイド濃度の場合でも Am(III)の移行挙動は、核種-コロイドの収脱着速度を考慮するか否かによる差は認められず、この影響は評価上有意なものとはならないと考えられる。むしろ、本検討を通じて、地下水中コロイドの濃度が高くなるにつれて核種の移行が増加する傾向にあることが示され、安全評価上、処分環境下におけるコロイド濃度に関する特性評価が重要であることが示唆された。

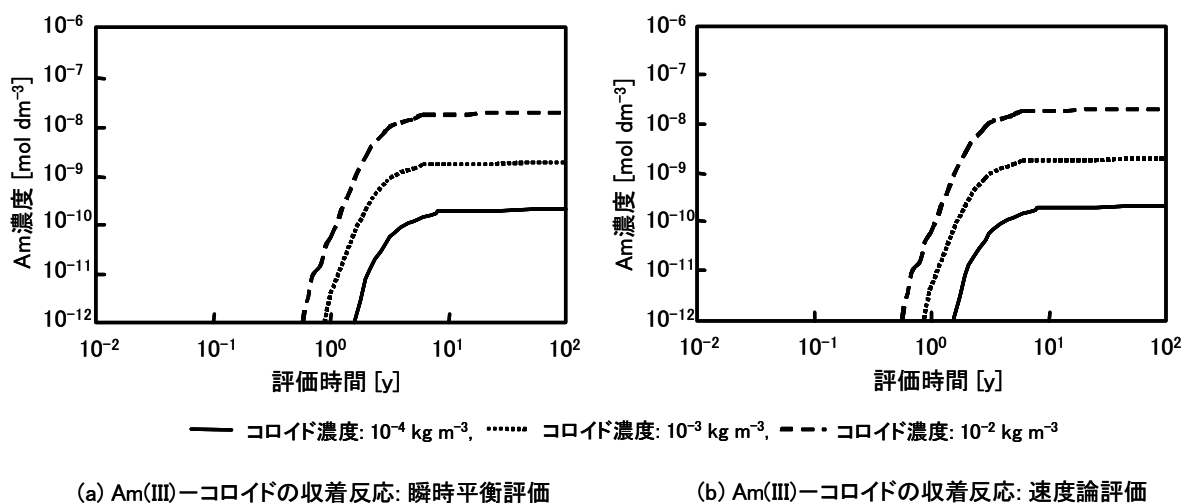


図 3.4.1-12 地下水流速 50 m y^{-1} の場合のコロイド共存系での Am(III)移行解析結果

また、図 3.4.1-13(a)および(b)に、地下水流速を1桁上げて 500 m y^{-1} と設定した場合の解析結果を示す。地下水流速が 500 m y^{-1} のもとでは、Am(III)の地下水コロイドへの収着を瞬時平衡とするか速度論を考え収脱着速度を考慮するかで解析結果に有意な差が認められる。したがって、地下水流速が極めて速い場合には、コロイドの影響を考慮した核種移行評価において核種-コロイドの収脱着速度を考慮する必要があることが示唆される。

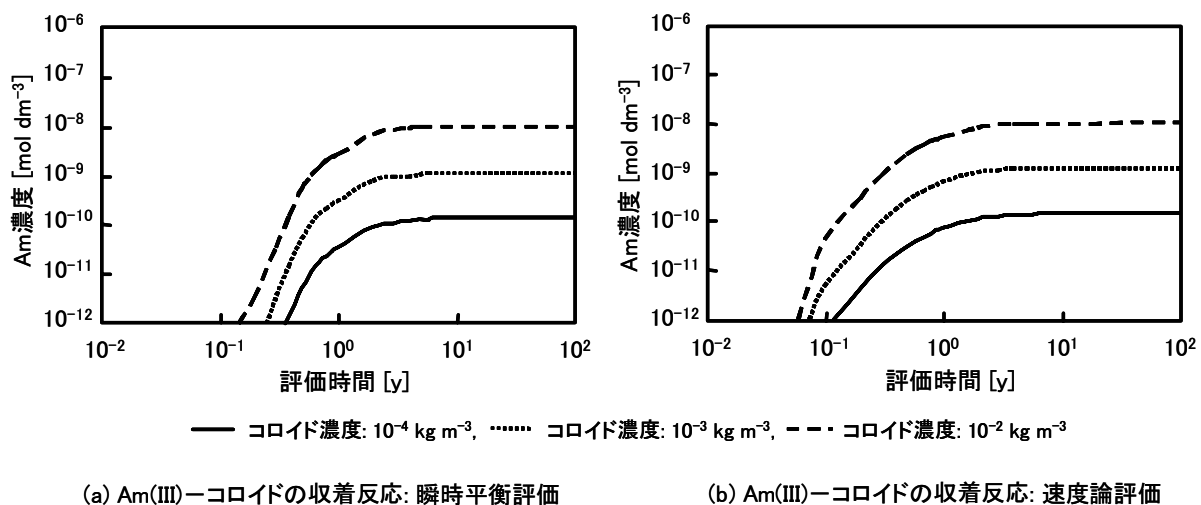


図 3.4.1-13 地下水流速 500 m y^{-1} の場合のコロイド共存系での Am(III)移行解析結果

なお、2004年よりグルムゼル岩盤試験場を利用した国際共同研究として原位置でのコロイド生成とその移行試験（CFM：Colloid Formation and Migration）プロジェクトが開始されている。この実験では、前述のCRRプロジェクトよりも低流速地下水条件を設定するなどして、解析評価上の核種－コロイドの収脱着速度の影響についてより詳しい検討を行う予定である。

(3) 結論

核種移行挙動に及ぼすコロイドの影響評価モデルの開発に関し、以下のような成果が得られた。

(i) コロイドの濃度、安定性および移行性の評価

モデル計算に基づいて、緩衝材内側で生成するコロイドの移行性を具体的に評価し、緩衝材のフィルター効果によって粒子の大きさが1～1,000 nmと定義されるコロイドのうち最も小さい1 nmのコロイドをろ過することができる緩衝材の有効粘土密度を1.5 Mg m⁻³と試算した。また、緩衝材からのベントナイトコロイドの生成について、ベントナイト粒子の熱運動に起因するコロイド生成の可能性を示すとともに、モデル計算、室内実験および坑道で採取した地下水を対象とした実験に基づき緩衝材外側でのベントナイトコロイドの安定性を評価し、イオン濃度によっては、安全評価においてベントナイトコロイドが地下水で安定に存在するとした検討が必要になる可能性のあることを示した。さらに、採取した地下水中のコロイドについて、ろ過と地下水の化学組成の濃度分析を組み合わせることでコロイド濃度を推測する手法を提示し、採取した地下水中の天然コロイド濃度を測定するとともに、予察的に収着試験を実施して天然コロイドに対するAm収着特性に関する知見を得た。これらのデータは、第2次取りまとめに比べ、安全評価においてコロイドの影響が顕在化する可能性がある条件をより具体的に示すものである。また、第2次取りまとめでは実測例のなかったコロイド濃度について実測例が得られ、これは、コロイド影響評価モデルによる計算を行う際に入力パラメータとして用いられる。

(ii) コロイドへの核種収着性およびその不可逆性の評価

収着試験および脱着試験により、ベントナイトコロイドに対するCsの収着性および不可逆性を評価し、ベントナイトコロイドに対する分配係数を取得するとともに、その収着は可逆的であるとの知見が得られた。また、Csのベントナイトコロイドへの収着性は、粉末状ベントナイトより大きいことを確認した。これらのデータや知見は、第2次取りまとめでは具体的な実測例がなかったものであり、コロイド影響評価モデルによる計算を行う際に入力パラメータとして用いられる。

(iii) コロイド影響評価モデルの開発

第2次取りまとめでは、線形／瞬時／可逆収着を仮定し、亀裂性媒体を対象としたモデルで簡易的に評価を行っていたのに対し、収脱着速度の考慮および媒体として亀裂性媒体と多孔質媒体の両方を対象とすることが可能な核種移行計算コードCOLFRAC-MRLを提示した。室内カラム通水試験および原位置核種移行試験結果をCOLFRAC-MRLを用いて解析し、このモデルの妥当性を確認した。また、地下水流速が極めて速い場合には核種の収脱着速度を考慮する必要があること、また地下水中のコロイド濃度が核種移行挙動に大きく影響することを示す解析結果が得られた。このようなモデル開発および解析評価により、コロイドの影響が顕在化する可能性のある環境条件を特定することが可能となった。

(4) 今後の課題

これまでの成果から、緩衝材内側で生成するコロイドについては、緩衝材の有効粘土密度の設定などの工学的な対策により緩衝材外側への移行をより確実に抑えることができる可能性が示された。また、緩衝材外側で考慮すべき安定なコロイドとして、緩衝材から生成するベントナイトコロイドと地下水中の天然コロイドが考えられた。今後、緩衝材コロイドのフ

フィルター効果が期待できる人工バリアの条件を実験的に確認するとともに、ベントナイトコロイドおよび天然コロイドについて、濃度、移行性、核種の収着性とその不可逆性の評価を行い、安全評価におけるコロイド影響の考慮の必要性の判断やモデル計算に必要なデータを取得する。また、不可逆収着やフィルター効果を考慮することができるコロイド影響評価モデルにより、コロイドの影響が顕在化する可能性のある環境条件の具体化を進めていく。具体的には、以下のような課題が挙げられる。

(i) コロイドの濃度、安定性および移行性の評価

緩衝材内側で生成するコロイドの緩衝材によるフィルター効果を実験的に確認するためには、試験溶液中において安定で粒径が 1 nm 程度に揃っており、緩衝材成分との区別が可能なコロイドが必要となる。今後、このようなコロイドが調製できれば、緩衝材のフィルター効果を実験的に確認していく。また、フィルター効果に及ぼすベントナイト変質の影響については、分冊 2 の 3.4.1 項に示された人工バリアの変質・劣化挙動を参考に、必要に応じ今後検討していく。緩衝材から生成するベントナイトコロイドについては、今後、室内実験および海外での原位置試験（下記 CFM プロジェクト）においてその生成挙動を評価するとともに、緩衝材外側でのベントナイトコロイド濃度やその影響などを実験的に確認する。地下水中のコロイドは、地下水採取時の擾乱（流速、圧力、pH/Eh などの変化）により、その濃度が容易に変化する可能性があるため、今後、擾乱の小さい地下水採取方法を開発するとともに、それを用いて坑道などで採取した地下水中のコロイド濃度の測定事例を拡充する。母岩中のコロイドの移行性に関しては、亀裂媒体中でのコロイドのフィルター効果のモデル化が課題であり、今後、室内実験に基づく現象理解とそのモデル化を進める。なお、平成 16 年度より、グリムゼル岩盤試験場において CFM プロジェクトが開始されているが、このプロジェクトでは、擾乱が少なく地下水流速が遅い処分場と同様の条件下において、緩衝材からのコロイド生成挙動および核種移行挙動を評価する予定である。このプロジェクトで得られる知見は、上記の課題解決に資するものである。

(ii) コロイドへの核種収着性およびその不可逆性の評価

今後、収着試験および脱着試験により、Cs 以外の重要核種、すなわち、Np(IV) (IV 価アクチニドの代表)、Am(III) (III 価アクチニドの代表) および Tc(IV) について、ベントナイトコロイドに対する収着性および不可逆性を評価するとともに、ベントナイトコロイドと粉末状ベントナイトに対する分配係数の違いに関する検討を進め、既存の JNC-SDB 内の粉末状ベントナイトに対する分配係数をベントナイトコロイドに適用する手法を確立する。また、核種-コロイド-岩石の三相系では、核種-コロイドあるいは核種-岩石の二相系で得られたものと異なる収着性が認められている (Geckeis and Missana, in prep.)。今後、室内実験により、この原因を調べるとともに、二相系で得られた収着性を三相系に適用する手法を確立する。地下水コロイドに対する収着性およびその不可逆性については、地下水コロイドの採取・評価手法が確立され、安定に採取できる地下水が得られた場合、収着試験や脱着試験の実施を検討する。

(iii) コロイド影響評価モデルの開発

母岩領域におけるコロイドのフィルター効果は、コロイドの移行挙動に大きな影響を及ぼす因子の一つである。COLFRAC-MRL では、一定割合のコロイドがフィルター効果によりろ過されることを仮定することが可能であるが、フィルター効果のメカニズムが十分解明されていないため、実際の地質環境におけるコロイドのフィルター効果をどのように理解してモデル化し評価に取込むかが課題となる。また、コロイドと核種の不可逆収着の存在が確認された場合は、その影響の COLFRAC-MRL における取扱いを検討する。これらを考慮して高度化されたモデルを用いて、より処分環境に近い環境下で行われる CFM プロジェクトの原位置試験結果を解析し、モデルの妥当性を確認する。

3.4.2 天然有機物・微生物の影響評価モデルの開発

(1) はじめに

地下深部の処分環境下には、緩衝材であるベントナイト中に存在する有機物や、地質媒体や地下水に含まれる天然の有機物や微生物が存在することが考えられる。核種移行に及ぼす有機物および微生物の影響は、大きく2つに分けることができる。すなわち、核種が有機物と錯形成すること、あるいは、微生物に収着されること（核種と有機物・微生物との相互作用）により、緩衝材や母岩による核種の移行遅延効果が減少する直接的な影響と、有機物や微生物が地下水の酸化還元状態や化学的組成を変化させることにより、核種の移行挙動が変化する間接的な影響である。前者の影響評価に当たっては、コロイドの場合と同様に、有機物や微生物の濃度、安定性、移行性、核種との錯形成能・収着性およびそれらの不可逆性などの特性評価と、移行挙動や核種と有機物・微生物との相互作用のモデル化が必要であるが、移行挙動モデルについては、条件によってはコロイドのそれを適用することが可能と考えられる。一方、後者の影響評価では、起こりうる現象の理解を進め、想定されるシナリオを明らかにした上で、そのシナリオ評価上重要な有機物や微生物の特性を評価するとともに、このプロセスのモデル化が必要となる。

有機物、特に、フミン酸、フルボ酸に代表される腐植物質は、様々な地下水中に安定に存在すること、核種との錯体形成能を有することから、核種移行挙動に及ぼす影響が示唆されている（たとえば、菅野，1995）。各国では、これまでに地下水中に存在する有機物の種類および濃度、移行性、核種との錯形成能、錯形成時における核種の地質媒体への収着性および移行性に及ぼす影響の評価、これらの影響のモデル化などが行われてきた。しかし、核種との相互作用を評価する際、腐植物質の分子量が幅広く、錯形成能に寄与する官能基も不均質に分布するため、配位子濃度を一義的に決定することができず、厳密に熱力学的な考え方で錯形成の安定度定数を決定することは難しい。そのため、多くの研究者によって様々な形で安定度数の考え方が提案され、OECD/NEAなどの国際的な議論の場においても、統一された定義が定められていないのが現状である。

一方、微生物については、1980年代から諸外国において、地下深部に生息する微生物の調査、人工バリア材料および放射性核種との相互作用の評価、核種移行挙動に及ぼす影響のモデル化などが行われ、1990年代には諸外国の地下実験場などを利用して微生物に関する調査が行われたものの、処分の安全性に対する微生物の影響は十分明らかにはなっていない（大貫，2002）。

わが国においても、直接的な影響に関しては、地下水中の有機物や微生物の濃度、移行性、核種との相互作用などの特性評価と、相互作用モデルの開発が、間接的な影響に関しては、現象理解とシナリオの検討が進められてきた。最終的に得られる特性データおよびモデルは、コロイドの場合と同様、有機物および微生物の影響が顕在化する条件を明らかにし、安全評価シナリオにおいて、有機物および微生物の影響を考慮するか否かを定めるために用いられる。第2次取りまとめにおいては、特性評価およびモデル開発の成果について、以下のように報告している。

- ・圧縮ベントナイトの持つフィルター効果により、分子量の大きな有機物は緩衝材中を透過できないことが実験により確認されており、分子量の小さな有機物のみが溶解度、拡散、収着に影響を及ぼす可能性がある。しかし、核種と有機物との錯形成は、炭酸などの他の配位子との競合を考慮すると、溶解度への影響は顕著ではないという例が示されている。
- ・地質媒体中の収着に与える有機物の影響については、分配係数の不確実性としてとらえるべきものとする。有機物コロイドの影響については、無機コロイドに代表させた取り扱いが可能と考えられる。
- ・微生物による影響としては、酸化還元反応への影響に起因するオーバーパックの腐食あ

るいは放射性核種の移行挙動（沈殿／溶解，収着など）への影響，微生物の活動の一つである有機物の分解に起因する可溶性で可動性の有機物の増加やガスの発生，さらに，微生物自身の移動の影響などが想定される。

しかし，以下のような課題も挙げられている。まず，有機物および微生物の核種移行挙動への影響に関する詳細な検討は，具体的な地質環境条件での今後の研究に依存するとしている。特に，有機物と核種の相互作用については，有機物自体が起源により異なり，溶液条件によってその特性が変化することから，一般化した定量的な議論をするのは現状では困難であり，その詳細な現象の理解とそのモデル化は，腐植物質のキャラクタリゼーションとともに，今後の研究に期待するところが大きいとしている。地質環境が特定され，地下水中の有機物の種類や濃度が把握された際には，その有機物が核種移行に与える影響について，実験的な研究により，ある程度の定量化が可能としている。

一方，圧縮ベントナイトの持つフィルター効果については，第2次取りまとめでは，塩濃度の低い降水系地下水条件下においてのみ確認されていた。その後，Wold and Eriksen (2000)により，イオン強度が高い ($0.1 \text{ mol dm}^{-3} \text{ NaClO}_4$) 溶液中の場合，フミン酸やリグノスルフォネート（スルホン化されたフェニルプロパン基を伴うリグニン）のような高分子有機物が圧縮ベントナイト（MX-80）を透過すること，圧縮ベントナイト中のSrの拡散挙動に及ぼすフミン酸の影響は，フミン酸と錯生成しにくいいため有意でないことが示された。そこで，サイクル機構においても，クニゲルV1を対象として，海水系地下水条件下における圧縮ベントナイトのフィルター効果を確認することとした。

以上のような課題を踏まえ，以下のように研究課題を設定した。

(i) 有機物の濃度および移行性の評価

地下水中に存在する天然有機物を対象として，室内実験および採取した地下水を対象とした実験を行い，有機物濃度および移行性を評価し，評価手法の整備および有機物濃度など影響評価モデルによる計算を行う上で必要なデータの取得を行う。また，緩衝材中の移行性について，分子量既知の標準有機物質を用いてデータが少ない海水条件下での圧縮ベントナイト透過特性データを取得する。

(ii) 有機物と核種の錯形成能とその不可逆性の評価およびモデル化

有機物との錯形成能が高く，安全評価上重要なIV価アクチニドを対象として，錯形成実験により錯形成速度や安定度定数などの錯形成能を評価するとともに，解離実験を行って解離時の速度や安定度定数などを取得し，錯形成時のデータと比較することにより，その不可逆性を評価する。これらのデータは，影響評価モデルによる計算を行う上で必要なものである。また，既存の有機物と核種との錯形成モデルを調査し，安全評価で用いるべき錯形成モデルを提示する。

(iii) 微生物影響評価モデルの概念検討

微生物影響評価モデルの概念を検討する。このため，3.4.1項のコロイド影響評価モデルを活用して，微生物の核種移行挙動に及ぼす影響の感度解析を実施し，重要なパラメータに関する知見を得るとともに，微生物が影響を及ぼす可能性のある核種移行上重要な現象を抽出する。また，微生物影響評価シミュレーションコードに取り入れるべき評価モデルの概念を検討し，これを取り入れたコードで感度解析を実施することで，主要な微生物影響の抽出を行う。

なお，前述のように，有機物・微生物の直接的な影響については，コロイドと同様に考えることができることから，3.4.1項の(1)で述べた通り，事業の実施主体（原子力発電環境整備機構，2004）および安全規制側（原子力安全委員会 特定放射性廃棄物処分安全調査会，2002；総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会，2003）双方のニーズを考慮し，データの取得およびモデル化を進める必要があるといえる。

(2) 研究内容

(i) 有機物の濃度および移行性の評価

新第三紀堆積岩地域（千葉県茂原ガス田地域）の坑井（深度 742~1,302 m）から自噴する地下水を対象とし、標準的な手法を用いてその中に含まれる有機物濃度の分析を行った。自噴する地下水を採取し、孔径 0.45 μm メンブランフィルター（ADVANTEC 社製）でろ過した後、ろ液中に含まれる有機酸の分析を行った（亀井, 2000）。ろ液中の全有機炭素濃度（TOC）は、JIS K0102 22.1 に準拠した湿式酸化法—赤外線分析法（武田ほか, 1992）で測定した。TOC を測定する方法としては、JIS に準拠した湿式酸化法と燃焼酸化法—赤外線分析法がある。湿式酸化法は、定量下限値が約 0.2 mg dm^{-3} と燃焼酸化法による下限値約 1 mg dm^{-3} に比べて低いこと、共存塩の濃度が高い海水についても定量できること、懸濁物質が多く存在する場合でもホモジナイザー（均一剤）を添加すれば測定可能であることから、本法を選定した。有機酸のうち、フミン酸およびフルボ酸については、鉄をマスクングした後に吸光度測定法（日本分析化学会北海道支部, 1981）で測定し、その他のカルボン酸類については、武田ほか（1992）に従い、イオンクロマトグラフ法またはガスクロマトグラフ FID 法により分析した。

有機物濃度の分析結果を表 3.4.2-1 に示す。分析対象とした有機酸のうち、有意な濃度が検出されたのはフルボ酸とコハク酸で、他の分析対象有機酸はいずれも検出限界以下であった。フルボ酸とコハク酸の濃度の和は 9.2~11.8 mg dm^{-3} であり、TOC 濃度との差は、今回の分析対象以外の成分が寄与していると考えられた。今後は分析対象有機物の種類をさらに多くすることが望ましいが、今回用いた方法により、地下水中の TOC および主な有機物濃度を測定することが可能であることが示された。

表 3.4.2-1 茂原ガス田で採取された地下水中の有機物濃度

採取深度 [m]	742 - 1,200	743 - 1,301	852 - 1,302
pH	7.82	7.81	7.69
Eh [mV]	-27	-57	-15
TOC [mg dm^{-3}]	23 \pm 2	22 \pm 1	24 \pm 0
フルボ酸 [mg dm^{-3}]	3.5 \pm 0.2	3.4 \pm 0.1	3.3 \pm 0.2
フミン酸 [mg dm^{-3}]	< 2	< 2	< 2
コハク酸 [mg dm^{-3}]	8.3 \pm 0.3	8.2 \pm 0.1	5.8 \pm 0.5

※ギ酸、酢酸、乳酸、プロピオン酸、吉草酸、酪酸：検出限界(2 mg dm^{-3})以下

次に、天然有機物の模擬物質として、既知の分子量と均一な官能基を持つポリアクリル酸を用いて、人工海水中で膨潤させた圧縮ベントナイトに対する透過試験を行い、緩衝材中での有機物の移行性を調べた（飛塚ほか, 2005）。ベントナイトはクニゲル V1 を用い、乾燥密度 1.2 Mg m^{-3} でステンレス（NAS64）製カラムに充填した。平均分子量 15,000 のポリアクリル酸 Na または 450,000 のポリアクリル酸（ともに Aldrich 社製）を、蒸留水、または ASTM D-1141-98 基準により調製した人工海水にそれぞれ溶かし、ベントナイトカラムに送液した。送液圧力は、蒸留水または人工海水に対するクニゲル V1 の膨潤圧（それぞれ 0.31 MPa, 0.087 MPa）より低い圧力とするため、それぞれ 0.3 MPa, 0.08 MPa とした。ベントナイトを透過した溶液を一定期間ごとに分取し、溶液中のポリアクリル酸濃度および分子量分布をゲル浸透クロマトグラフィーにより測定した。

透過溶液中の分子量 15,000 のポリアクリル酸濃度の変化（破過曲線）を図 3.4.2-1 に示す。イオン強度が高い人工海水系では、ポリアクリル酸の破過が蒸留水系よりも早く、約 50 日頃からポリアクリル酸濃度の増加が認められた。蒸留水系では 100 日過ぎからわずかに破過が

認められた。一方、分子量 450,000 のポリアクリル酸については、蒸留水系、人工海水系ともに 128 日まで破過が認められなかった。単位時間あたりの人工海水系の透過溶液量は、蒸留水系のその約 2 倍であった。

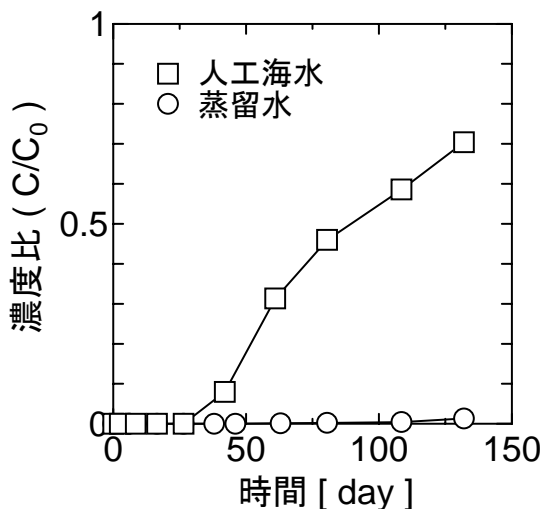


図 3.4.2-1 圧縮ベントナイトからのポリアクリル酸（分子量 15,000）の破過曲線

蒸留水系に比べて人工海水系においてポリアクリル酸が透過しやすい理由としては、以下のようなことが挙げられる。既報では、ベントナイトのフィルター効果の大きさは、有機物の分子量のみならず分子の立体構造によって決まるとしている（金持ほか，1999）。つまり、ポリアクリル酸は鎖状の炭素骨格にカルボキシル基が並ぶ高分子化合物であり、アルカリ性の環境では、プロトンが解離したカルボキシル基同士の静電的反発によって直鎖が伸びた状態となる。一方、ベントナイト中のイオンが拡散できる間隙には、スメクタイト層間とスメクタイト粒子外側の外部間隙がある。ポリアクリル酸のような陰イオンは、静電的反発力に起因する陰イオン排除効果によって、透過できるベントナイト中の間隙が限られるが、イオン強度の高い人工海水中では、陰イオン排除効果が減少するため、透過できる間隙が増加することが考えられる。さらに、イオン強度が増大するとスメクタイト結晶面近傍の電気二重層が減少することにより、スメクタイト粒子の凝集が促進され、これによってスメクタイトの外部間隙が広くなることが考えられる。これらの要因により、結果的に人工海水系においてポリアクリル酸が比較的容易にスメクタイト中を透過できたと推察される。

本試験の結果から、圧縮ベントナイトによるフィルター効果の限界分子量は、450,000 より小さく、立体構造を直線的な構造に変えることができるポリアクリル酸のような分子は、15,000 程度の分子量でフィルター効果を受けにくいと考えられる。今後、ベントナイトの陰イオン排除効果をより定量的にモデル化し、有機物に対する効果を評価するとともに、実験的にベントナイトのフィルター効果に及ぼす有機物の立体構造の影響を調べていく。

(ii) 有機物と核種の錯形成能とその不可逆性の評価およびモデル化

天然有機物と核種との錯形成能評価の一つとして、フミン酸共存下での Th(IV) の溶解度試験を実施した（上田ほか，2000）。試験はバッチ式で、未飽和法により行った。Th をアモルファス固相 $\text{Th}(\text{OH})_4$ の形で、全溶解した場合に $1.7 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$ となるよう添加し、ここに異なる濃度の精製 Aldrich フミン酸を加え、pH を 7~9 に調整した。なお、イオン強度は NaClO_4 を用いて 0.1 または 0.01 に調整した。一定期間ごとに溶液を採取し、分画分子数 10,000 の限外ろ過フィルターでろ過後、ろ液中の Th 濃度を測定した。分析以外の操作は O_2 濃度 0.1 ppm 未満、 CO_2 濃度 1 ppm 未満である Ar 雰囲気で行った。

イオン強度 0.1 における Th 濃度に及ぼすフミン酸濃度の影響を図 3.4.2-2 に示す。フミン酸濃度の増加に伴って Th 濃度が増加する傾向が認められることから、Th(IV)-フミン酸錯体

の生成が示唆された。また、本試験のように、錯生成の際に競合する配位子が他に共存しない場合、数 mg dm^{-3} のフミン酸により Th の溶解度が有意に増加することが分かった。

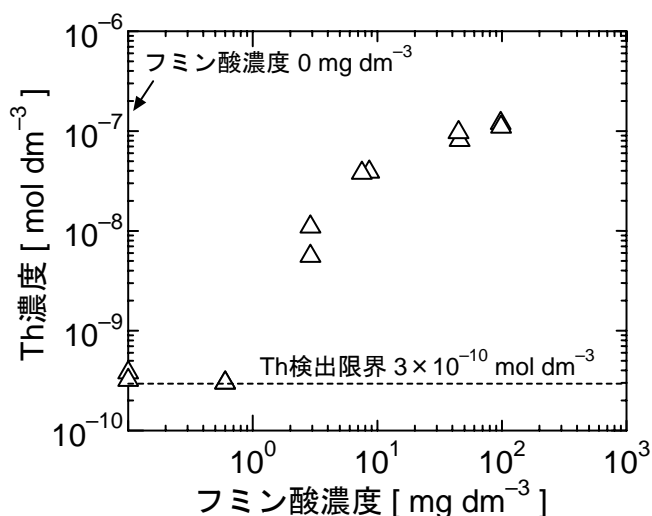


図 3.4.2-2 溶液中 Th 濃度に及ぼすフミン酸濃度の影響 (イオン強度 0.1 の場合)

(1)で述べたように、フミン酸と核種の錯形成に係る安定度定数は、厳密に熱力学的な考え方で定義することは難しいことから、特定の実験条件下でのみ比較が可能ないくつかの見かけの安定度定数が提案されている。ここでは、比較的容易に求められる次式の定義に基づいて Th(IV)-フミン酸錯体の安定度定数を評価した。なおこの定義による場合、実験条件 (pH, 核種濃度, イオン強度, フミン酸の種類など) や、錯形成していないフリーの核種濃度あるいは錯生成していないフミン酸濃度の評価方法が異なると、安定度定数も異なることに注意が必要である。

$$\beta_{\alpha} = \frac{[\text{MHA}]}{[\text{M}^{n+}] [\text{HA}]} \quad (3.4.2-1)$$

ここで、[MHA] : フミン酸と錯生成している金属イオン濃度 [mol dm^{-3}], [Mⁿ⁺] : 錯生成していない金属イオン濃度 [mol dm^{-3}], [HA] : 錯生成していないフミン酸中のプロトン解離サイト濃度 [mol dm^{-3}] である。錯生成していない Th(IV)濃度は、サイクル機構の熱力学データベース (Yui et al., 1999) 中の Th(IV)の溶解度積 $\log K_{\text{sp}} = -45.5$ および試験における pH から求めた。錯生成していないフミン酸中のプロトン解離サイト濃度については、別の試験で行った精製 Aldrich フミン酸の酸塩基滴定データ (飯島ほか, 2004b) に基づき設定した。その結果、pH=8, 初期 Th 濃度 $1.7 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$, イオン強度 0.1 の条件下で、Th(IV)-フミン酸錯体の安定度定数は $\log \beta_{\alpha} = 14.6 \sim 17.5$ と見積もられた。

また、炭酸およびフミン酸共存下での Th(IV)の溶解度試験を行った (上田ほか, 2000)。結果を図 3.4.2-3 に示す。0.015 mol dm^{-3} の炭酸が存在する系では、フミン酸が 10 mg dm^{-3} 共存する場合としない場合とで、Th(IV)の溶解度に大きな差は認められなかった。したがって、炭酸が約 0.02 mol dm^{-3} 以上存在する系では、10 mg dm^{-3} 程度のフミン酸は Th(IV)の溶解度に与える影響は顕著ではないと考えられる。

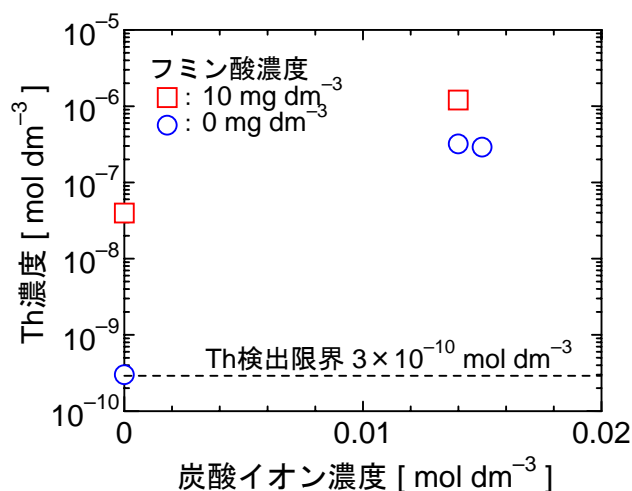


図 3.4.2-3 溶液中 Th 濃度に及ぼす炭酸の影響

Th(IV)と同様に IV 価のアクチニドである Np(IV)について、フミン酸共存下での溶解度試験を実施した(飯島ほか, 2004b; 飛塚ほか, 2003)。試験はバッチ式で、過飽和法により行った。異なる濃度の精製 Aldrich フミン酸溶液に、初期濃度 1.1×10^{-5} または 1.1×10^{-3} mol dm⁻³ となるよう Np 溶液を添加し、pH を 8 に調整した。なお、Np を IV 価に還元するための還元剤として Na₂S₂O₄ を 0.05 mol dm⁻³ の濃度で添加しており、試験期間を通じて Eh は -300 mV 程度に保たれた。イオン強度は 0.25 であった。一定期間ごとに溶液を採取し、分画分子数 3,000, 10,000 および 50,000 の限外ろ過フィルターでろ過後、ろ液中の Np 濃度を測定した。分析以外の操作は O₂ 濃度 0.1 ppm 未満, CO₂ 濃度 1 ppm 未満である Ar 雰囲気で行った。

その結果、いずれの初期 Np 濃度の場合も、フミン酸濃度の増加に伴い溶液中の全 Np 濃度は増加した。初期 Np 濃度 1.1×10^{-5} mol dm⁻³ の結果を図 3.4.2-4 に示す。分子量 3,000 以上のフラクションの Np は、フミン酸濃度とともに増加する傾向が認められたことから、Np(IV)-フミン酸錯体の生成が示唆された。分子量 3,000 以下のフラクションの Np は、濃度の有意な増加が認められなかったことから、Np(IV)-フミン酸錯体の分子量は 3,000 よりも大きいと考えられた。また、本試験のように、錯生成の際に競合する配位子が他に共存しない場合、数 mg dm⁻³ のフミン酸により Np の溶解度が有意に増加することが分かった。

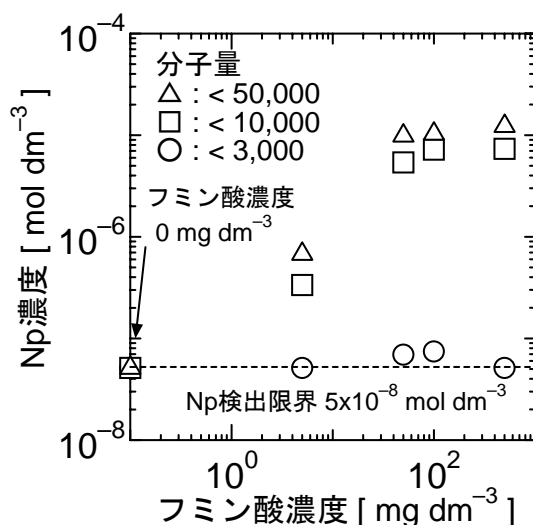


図 3.4.2-4 溶液中 Np 濃度に及ぼすフミン酸濃度の影響
(初期 Np 濃度 1.1×10^{-5} mol dm⁻³ の場合)

Th(IV)と同様、Np(IV)-フミン酸錯体の安定度定数を、(3.4.2-1)式により求めた(飯島ほか, 2004b)。錯生成していないNp(IV)濃度は、JNCの熱力学データベース(Yui et al., 1999)中のNp(IV)の溶解度積 $\log K_{sp} = -54.5$ および試験におけるpHから求めた。錯生成していないフミン酸中のプロトン解離サイト濃度については、酸塩基滴定データ(飯島ほか, 2004b)に基づき設定した。その結果、pH=8、初期Np濃度 $1.1 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$ 、イオン強度0.25の条件下で、Np(IV)-フミン酸錯体の安定度定数は $\log \beta_{\alpha} = 26.3$ と見積もられた。

このように、Th(IV)およびNp(IV)について、限定的な条件下ではあるが、第2次取りまとめでは報告されていなかった安定度定数を求め、錯形成能を評価することができた。

ここで、上記の錯生成試験において、Np(IV)-フミン酸錯体が存在する溶液のpHを強酸性(pH 0以下)に調整した際、溶液中に残存するNp濃度が全Np濃度に比べて減少することが認められたことから、Np(IV)とフミン酸の錯形成の不可逆性を検討した(飯島ほか, 2004b)。結果を図3.4.2-5に示す。溶液中に存在するNpの割合は、フミン酸濃度が 5 mg dm^{-3} の場合、0.8程度でほぼ一定だが、フミン酸濃度が 50 mg dm^{-3} 以上になると、濃度が高くなるほど小さくなった。また、錯生成反応時間が長くなるほど溶液中に存在するNpが減少し、フミン酸濃度 500 mg dm^{-3} の場合、錯生成開始直後には0.55程度だった割合が、158日後には0.35まで減少した。溶液中から除去されたNpは、pH調整時にフミン酸から解離せず、フミン酸とともに沈殿したと考えられる。本試験結果は、このような解離しにくい強い結合のNp(IV)-フミン酸錯体が、フミン酸濃度の増加とともに、また、錯生成時間の増加とともに、増加することを示している。このように、第2次取りまとめでは考慮していなかった、解離しにくい、不可逆的な錯形成の可能性が示唆された。

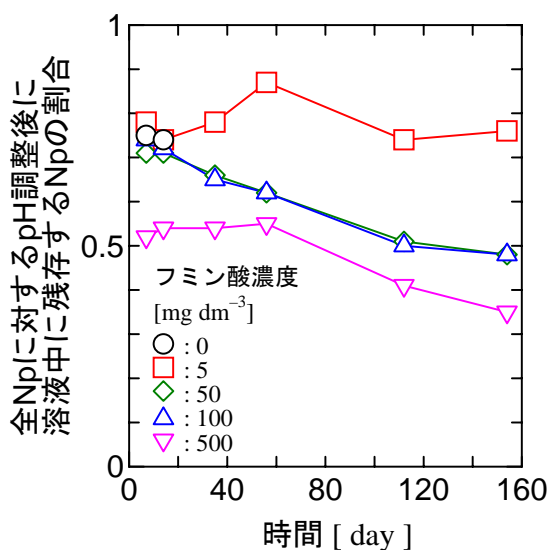


図 3.4.2-5 pH を強酸性 (0 以下) に調整した際に溶液中に存在する Np の割合

さらに、天然有機物のうちフミン酸などの腐植物質と核種との錯形成モデルについて調査した。腐植物質は、カルボキシル基、水酸基などの配位可能な官能基を多様な形で含む高分子化合物であるため、核種との相互作用は、組成の不均質性や腐植物質が高分子であることに起因する影響を受け、pH、金属イオン濃度、イオン強度などに対して通常の配位子とは異なる依存性を示す。しかし、これらの影響の定量的評価、すなわち、熱力学的に厳密な相互作用定数の評価は難しいことから、通常錯生成と同じように取り扱うことにより、試験条件などにより変化する見かけの安定度定数の形で評価するという方法が一般的である。そのような金属-有機物錯体の錯形成に対する安定度定数の定義は多岐にわたり、未だ統一したモデルは得られていない。そこで、これまでに提唱されているモデルのうち、Charge neutralization model (以下、「CNM」という)、Model V/VI、NICA-Donnan model の3つについて、各モデルの長所・短所などを整理した(斉藤ほか, 2004)。

概略を表 3.4.2-2 に示す。CNM では、腐植物質の陽イオン交換容量に対する錯形成可能な最大金属イオン濃度の比で定義される Loading Capacity (LC) という値を導入することにより、比較的少ないパラメータで相互作用を表している。しかし、LC が結果的に官能基の解離度や不均質性を表す値になっているため、実験条件により LC の値が変わることになる。したがって、異なる実験条件間で安定度定数を比較することは難しい。Model V/VI および NICA-Donnan model では、酸解離定数の異なる複数のサイトを仮定することで、腐植物質の持つ官能基の不均質性を考慮している一方、計算に必要なパラメータ数は必然的に多くなる。この他にも、(3.4.2-1)式で定義される見かけの安定度定数で表す方法など、多くのモデルが多く研究者により提案されている。今後、他の様々なモデルも加えて長所と短所を比較し、安全評価への取り込みの可能性も勘案しつつ最適なモデルを選定していく。

表 3.4.2-2 核種と腐植物質との相互作用モデルの比較

モデル	長所	短所
Charge neutralization model (CNM)	Loading Capacity(LC)と呼ばれる規格化因子に、不均質性やプロトン競合などの効果を持たせることにより、比較的少ないパラメータで相互作用を記述可能。	異なる実験条件間での安定度定数の比較は困難。
Model V/VI	酸解離定数の異なる8種類のサイトを仮定し、官能基の不均質性を考慮。単座配位だけでなく多座配位も考慮。フィッティングパラメータは比較的少ない。	8種類の官能基分布の設定根拠が乏しい。物理的意味が曖昧なパラメータがある。
NICA-Donnan	連続的な分布を持ち、酸解離挙動の異なる複数のサイトを仮定して、不均質性を考慮。また、有機物分子近傍での静電相互作用を考慮。	計算に必要なパラメータが多い。

(iii) 微生物影響評価モデルの概念検討

微生物が核種移行に及ぼす影響に関しては、微生物影響評価シュミレーションコードが開発されており（菅野ほか，2004），定量的な評価手法の整備が進められている。このコードでは、微生物を主要な代謝群ごとに6種類に区分し、微生物量、微生物反応に関する化学物質の濃度および核種濃度の時空間分布（1次元）を考慮したシミュレーションが可能となっている。

また、コロイドの影響を考慮した核種移行計算コード COLFRAC（Ibaraki and Sudicky, 1995a, 1995b）を用いて、微生物をコロイド相当と見なすことによる核種移行評価の検討を行った。表 3.4.2-3 には、核種移行に及ぼす微生物の影響に関する分類と、COLFRAC による評価の可能性を示す。COLFRAC においては、地下水中での微生物挙動のうち、微生物をコロイドとして捉えた場合のコロイド-核種の収着、コロイドの移行、コロイドフィルター効果を表現し得るものと考えられた。

そこで、本研究では、まず、地下水中での微生物と核種の相互作用に関する現象（ここでは、微生物が核種を収着する現象）に着目して情報を収集して、影響評価に必要な適切なパラメータ値（地下水中での微生物濃度、核種-微生物の分配係数など）を設定し、COLFRAC により核種移行に及ぼす微生物の影響を解析した（黒澤ほか，2004c）。

解析結果の一例として、文献調査の結果に基づき核種-微生物の分配係数を $10 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ に設定し（黒澤ほか，2004c）、Am の岩盤亀裂中の核種移行率を解析した結果を図 3.4.2-6 に示す。この際の解析では、Am が微生物に取り込まれて移行することを想定して、COLFRAC による計算では Am-微生物の脱着反応に関する速度定数について十分小さな値を設定した。この結果から、核種が微生物に取り込まれるような場合には、微生物濃度の増加に伴い核種

移行が促進されることが示された。これは、微生物のコロイド的挙動により核種の移行が有意に促進される可能性もあることを示唆する。ただし、微生物の存在形態としてバイオフィームが支配的となる場合には、核種を取り込んだ微生物はバイオフィームとして鉱物表面などに固定されることから移行が遅延される可能性も考えられる。

表 3.4.2-3 核種移行に及ぼす微生物の影響に関する分類

プロセス	現象	コロイド影響評価モデルの適用可能性
地下水化学への影響	<ul style="list-style-type: none"> ・酸生成（有機系／無機系） ・錯化剤の生成 ・酸素の消費 ・還元状態の形成 	×
バイオコロイド形成	<ul style="list-style-type: none"> ・コロイドの形成 ・微生物のコロイドとしての挙動（核種収着，取り込み，移行など） 	○
バイオフィーム生成	<ul style="list-style-type: none"> ・細胞表面への核種収着 ・細胞内部への核種の取り込み ・生物膜による鉱物表面被覆 	×

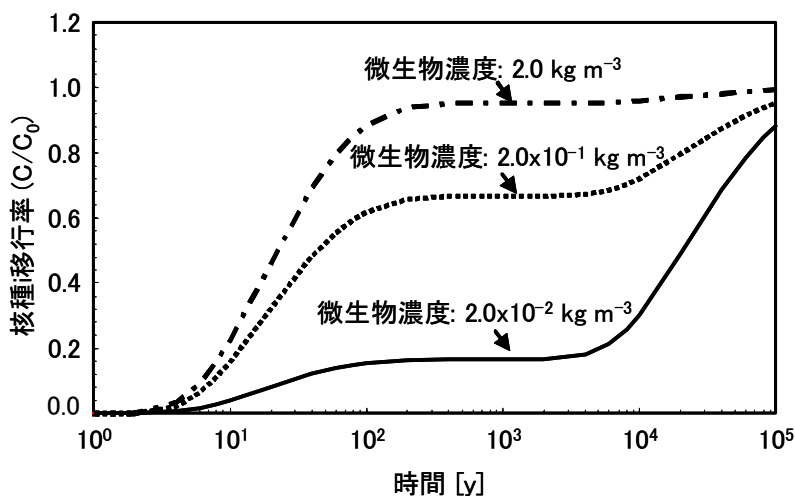


図 3.4.2-6 微生物への収着を考慮した岩盤中の Am の移行率（核種濃度比）

今後は、核種移行を促進させる可能性として微生物が核種を不可逆的に取り込む事象や、また核種移行を遅延させる可能性としてのバイオフィームの影響に関して、現象の解明とモデル化が必要である。東濃ウラン鉱床での研究から、地層中の有機物を介した微生物（硫酸還元菌）による硫酸還元とそれに続く硫化鉱物の沈殿が還元状態の形成に関与しているとの知見が得られている（笹尾ほか，2003）。また、微生物影響評価シュミレーションコードによる定量的な評価手法の整備が進められているが、機能拡張により微生物の移動や核種との相互作用を同時に考慮した時空間分布を算出することが可能となっている。以上のような成果を踏まえ、微生物による地下水化学の変化がアクチノイド元素などの化学形態に及ぼす影響や、微生物の成長と死滅などの詳細な現象を把握し、核種移行への影響を検討する必要がある。これらの影響を考慮したモデル開発を行うことにより、微生物の挙動が安全評価に及ぼす影響をより具体的に評価することが可能になると考えられる。

(3) 結論

核種移行挙動に及ぼす有機物および微生物の影響評価モデルの開発に関し、以下のような成果が得られた。

(i) 有機物の濃度および移行性の評価

JIS あるいは学会などにより示された標準的な方法を組み合わせて、採取した地下水中の有機物濃度を測定し、第2次取りまとめでは示されていなかった有機物濃度の実測データを取得した。有機物濃度は、有機物の影響評価モデルによる計算を行う際の重要な入力パラメータの一つであり、今回得られた実測データは、測定例の一つとして、今後の計算に用いることが可能である。

また、緩衝材中での有機物の移行性を調べるため、第2次取りまとめではデータがなかった海水条件下でポリアクリル酸の圧縮ベントナイト有機物透過試験を実施し、淡水条件に比べて海水条件下の方が有機物は透過しやすく、乾燥密度 1.2 Mg m^{-3} のクニゲル V1 によるフィルター効果の限界分子量は $450,000$ 以下に存在すると考えられる、との知見が得られた。この知見は、今後、安全評価において有機物の影響を考慮するか否かの検討に資するものである。

(ii) 有機物と核種の錯形成能とその不可逆性の評価およびモデル化

有機物と核種の錯形成能を評価するため、Th(IV)および Np(IV)について、フミン酸共存下で溶解度試験を行い、見かけの安定度定数を取得した。有機物との錯形成に関し、第2次取りまとめでは炭酸など他の配位子との競合を考慮すると有機物との錯形成は有意ではないとしていたのに対し、具体的に、Th(IV)について、溶液中の炭酸濃度が約 0.02 mol dm^{-3} より高い場合、 10 mg dm^{-3} 程度のフミン酸の溶解度に対する影響は有意でない可能性を示した。

また、Np(IV)とフミン酸の錯形成の不可逆性について検討するため、酸添加時の解離挙動を調べ、第2次取りまとめでは考慮していなかった不可逆的な錯形成が存在する可能性を示した。

さらに、一部の核種-フミン酸相互作用モデルの比較を実施した。この知見は、今後、安全評価で有機物の影響を考慮する場合に用いるモデルの選定に資するものである。

(iii) 微生物影響評価モデルの概念検討

第2次取りまとめでは評価されていなかった核種移行に及ぼす微生物の影響について、核種が微生物に取り込まれるコロイド的な挙動を仮定した核種移行解析を実施したところ、微生物濃度によっては核種移行が促進される可能性が示唆された。これにより、核種移行に及ぼす微生物影響のモデル化に必要な重要パラメータを抽出した。

(4) 今後の課題

今後、以下のような課題について、さらに研究を進めていく。

(i) 有機物の濃度および移行性の評価

有機物の濃度評価については、今回の評価手法の適用事例を増やし、その適用性を確認するとともに、場合によっては評価対象有機物を増やすなどの改良が必要と考えられる。今後、まず、幌延の深地層の研究施設計画で採取された地下水に対し本評価手法を適用し、実測データを拡充するとともに、手法の改良を検討する。

有機物の移行性、特に、緩衝材中でのフィルター効果の評価については、ポリアクリル酸と同様の透過挙動が、核種との錯形成能が大きく安全評価上重要と考えられるフミン酸やフルボ酸のような腐植物質でも起こりうるのか、圧縮ベントナイトの乾燥密度を変えるなど工学的な対策により有機物の透過を抑制できるのか、などを確認する必要がある。また、今回用いたポリアクリル酸は、立体構造を直線的に変えて圧縮ベントナイト中を透過した可能性があるが、フミン酸は核種と錯形成した場合、核種に対し立体的に架橋したり、

フミン酸が凝集することがあるため、透過しにくくなる可能性も考えられる。

今後、圧縮ベントナイト中のフミン酸やフルボ酸の移行性について、圧縮ベントナイトの乾燥密度やケイ砂混合率をパラメータとして評価するとともに、核種と錯形成した場合のこれらの移行性を調べ、有機物の立体構造の影響を評価していく。

(ii) 有機物と核種の錯形成能とその不可逆性の評価およびモデル化

有機物と核種の錯形成能については、極めて限定された条件下でフミン酸と Np(IV)および Th(IV)の錯形成の見かけの安定度定数を求めたものの、少なくとも安全評価上想定される条件をカバーできるよう、今後、さらに広い実験条件下で見かけの安定度定数を求めていく。

また、錯形成の不可逆性については、知見が十分でないこともあり、シナリオ上の取り扱いやモデルへの反映方法は、明確になっていない。今後、フミン酸錯体からの Np(IV)の解離実験を行うとともに、分光学的な手法を用いて核種の存在形態の同定を試み、核種の錯形成・解離挙動に関する知見を蓄積し、モデル化を進める必要がある。

さらに、錯形成挙動のモデル化については、今回調査したモデルのほか、見かけの安定度定数で表す方法など、多くのモデルが研究者により提案されている。今後、他の様々なモデルも加えて長所と短所を比較し、安全評価への取り込みの可能性も勘案しつつ最適なモデルを選定していく。なお、コロイドの場合と同様、核種-有機物-岩石の三相系では、核種-有機物、核種-岩石のような二相系で得られたものと収着性が異なることが示されており(たとえば、Benes et al., 1998)、モデル化を進める際にはこの点を十分考慮する必要がある。

(iii) 微生物影響評価モデルの概念検討

今後、微生物に固有な現象を考慮した場合に重要となるパラメータを抽出し、地下水化学などへの影響を含め微生物の定量的影響評価モデルを開発する。また、バイオフィームに関しては、実験的にバイオフィームを形成させ、核種移行に及ぼす影響を評価していく。

3.5 生物圏評価モデルの高度化

(1) はじめに

地層処分安全評価では、その一部として、人間の生活環境である地表環境における核種移行のプロセスとこれによる被ばくの形態（被ばく経路）についてモデルを構築して評価を行い人間への影響を推定するために生物圏評価を行うことが必要である。

しかしながら、安全評価は極めて長い時間を対象とするため、将来の人間生活の環境や生活様式を予測することは困難であり、その評価は長期間安定に存在する地下深部の地質環境やそこに構築される人工バリアのものと比べ不確実性が大きい。たとえば、国際原子力機関（1989）（以下、「IAEA」という）では、人間環境に関する予測が可能な期間は10³年未満であるとの見解が示されており、また、モデル予測を適用できる時間スケールを、地質環境や人工バリアについて～10⁵年、地表環境について～10⁴年、生活様式では～100年としている例もある（高須ほか、1999）。

そのため、生物圏を、人間生活の環境や生活様式の仮定を安全評価の目的に沿って整合性を取りながら合理的に設定し適切な評価指標（線量など）に変換するための道具として捉えるレファレンスバイオスフィア（Reference Biosphere）の考え方（IAEA, 2003）が適用できると考えられている（原子力発電環境整備機構, 2004; 核燃料サイクル開発機構, 1999）。レファレンスバイオスフィアの考え方を具体的にモデル構築に反映するためのアプローチとして、評価の前提条件に基づいて、国際生物圏 FEP リスト（BIOMOVs II, 1996）や地層処分に関する原理原則を参照しながら、将来の人間の生活の環境や生活様式を生物圏システムや被ばくグループとして仮定を行い、これらと整合性を取りながらモデルの作成を行うことが提唱されている（IAEA, 2003）。

第2次取りまとめでは、レファレンスバイオスフィアの考え方を導入し、放射性核種が生物圏に流入すると想定される場所を幅広い地質環境条件のうち特に地下水や地形の特徴に応じて設定し、また現在と同様の生活様式が将来も継続するという仮定のもとに、種々の被ばく経路を具体的に設定して安全評価の基本となる指標である線量の評価（実際には、地層処分に起因する放射性核種の移行率を生物圏で人間が受ける放射線量に換算する係数である「線量への換算係数」の算出）を行った。

一方、原子力発電環境整備機構（2004）では、「立地点の安全評価にあたっては、そのサイト環境条件やそれに応じて想定される処分場のデザインに適合したものとすることが必要である」とも述べられており、また規制に関する公開文献にも「処分地が持つ条件を適切に考慮し、評価モデルおよびパラメータを設定し評価する」「評価結果が過度に保守的とならないようにする」などのことが指摘されている（原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会, 2000; 総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会, 2003）。

ここで、生物圏にはバリア性能は期待していないものの、そこでの希釈や分散をどのように取り扱うかは線量への換算結果に大きく影響し得る。そのため、実際の地表環境の条件を考慮しつつ、過度に保守的あるいは非保守的とならないような評価としていくことの可能性や方法を検討しておくことは重要であると考えられる。

一方、超長期にわたる地層処分システムの安全評価の不確実性に対処するための方法のひとつとして、IAEA（1994）は、「線量やリスクに基づく評価結果を、生物圏モデルでなされる仮定に依存しない別の独立した指標によって補完すること」としており、たとえば、処分システムの隔離能力や放射性廃棄物の潜在的な危険性を示す尺度としては、以下のような具体的な提案がなされている。

- ・放射性核種の濃度およびフラックス
- ・時間
- ・放射能毒性指数

このような線量やリスク以外の安全指標を考慮することの重要性は国内での検討においても指摘されている（原子力発電環境整備機構，2004；核燃料サイクル開発機構，1999；原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会，2004）。また，近年のセーフティケースの議論の中でも，複数の安全指標を用いることが安全性に関する信頼性を高めるための鍵のひとつとして指摘されている（OECD/NEA，2002）。

以上のことを踏まえ，環境条件を特定できない現段階での研究開発として，特に実際の地表環境を対象とした生物圏評価の実施に先立って検討を行っておくべき技術的課題として以下のふたつを設定した：

- ・安全評価の一連の流れの中で，生物圏への核種の流入場所として設定する地質環境と生物圏とのインターフェイス（Geosphere Biosphere Interface，以下「GBI」という）は，生物圏での希釈や分散の程度にも大きく係わる可能性がある。そのため，仮想的な地表環境を対象とした GBI の設定に関する検討などを中心に，実際の地表環境の主要な特徴を取り込んでいくための手順および留意点などを提示する。
- ・核種ごとに百を超えるパラメータを取り扱う必要のある生物圏評価に関して，重要度の高いパラメータの抽出およびその現在の設定状況の整理などを通じて，環境条件が特定された場合の優先的なデータの取得やパラメータの設定などの効率的な実施を支援する手法を提示する。

さらに，線量やリスク以外の安全指標を考慮した安全評価の実施に先立って検討を行っておくべき技術的課題として，海外での評価事例や国際共同研究の成果を踏まえ，放射性核種の濃度やフラックスを指標として取り扱うために必要な情報収集および評価手法の検討を設定した。

(2) 研究内容

(i) モデル化手法の検討

生物圏のモデル化における実際の地表環境条件の考慮に関しては，実際の地表環境条件を考慮した評価を行うという方向性と，(1)で述べたレファレンスバイオスフィアの利用に到る背景とを勘案すると，

- ・生活様式に関しては第 2 次取りまとめにおける生物圏評価での取り扱い（レファレンスバイオスフィアの考え方を基本とし，食物摂取量などに関してはわが国における平均的な値を採用）を出発点とする
- ・地表環境に関しては，第 2 次取りまとめにおける生物圏評価の取り扱い（レファレンスバイオスフィアの考え方を基本とし，わが国における幅広い地表環境を考慮）を基本におきつつ，時間的な変化が少ないと考えられる，あるいは生物圏評価結果への影響の大きな地表環境の要因や要素については，それらについての実際の地表環境条件での特徴を生物圏評価で考慮する可能性およびその方法を検討しておく

ことが合理的であると考えられる。

国内外における生物圏モデルの検討例においては，しばしば非常に単純化された方法で地質環境から生物圏への核種移行を表現している（たとえば，第 2 次取りまとめにおいては地表近傍の帯水層の取り扱いを単純化している）。特に，生物圏への核種流入場所となる GBI に関しては，評価結果に大きな影響を与えることが知られており，実際の地表および地質環境の特徴を強く反映するものであると考えられている（IAEA，2003）。したがって，GBI の設定は，実際の地表および地質環境の特徴を取り込んだ評価を行う際に，優先的に検討すべき項目のひとつである。

そこで本検討では，わが国での地表環境の一般的な特徴を整理したうえで，いくつかの特徴を組み合わせた仮想的な地表環境を仮定し，その環境で考え得る GBI の候補の抽出を試みるとともに，GBI を絞り込むために有効となり得る考え方や調査との関係などを検討した。

まず、わが国での一般的な地表環境（地形、水文、人間活動など）の調査を踏まえて、地表環境を特徴づける事項の整理を行い、それらを組み合わせた3つの仮想的な環境パターンを、原環機構が示した地質環境の特徴（原子力発電環境整備機構、2004）ともほぼ整合するように設定した（表 3.5-1、表 3.5-2）。

表 3.5-1 地質環境の特徴と設定した仮想的な環境パターンとの対応

	原環機構が示した地質環境の特徴	
	地域*	岩種
環境パターンⅠ	内陸部丘陵, 内陸部平野, 沿岸部平野	結晶質岩
環境パターンⅡ	内陸部山地, 内陸部丘陵	堆積岩
環境パターンⅢ	沿岸部丘陵, 沿岸部平野	堆積岩

*:上記環境パターンは、原環機構が示した地質環境の特徴（原子力発電環境整備機構、2004）のうち、結晶質岩の内陸部山地、沿岸部山地、沿岸部丘陵、および堆積岩の内陸部平野、沿岸部山地には直接的には対応していないが、上記3つのパターンである程度類推できると考える。

次に、これら仮想的な環境パターンごとに、文献調査、概要調査、精密調査によって実際の地表および地質環境における情報が段階的に明らかになっていく状況を想定することにより、段階的に利用可能となる調査結果や解釈・モデル評価の結果などを総合的に活用して、地表近傍の帯水層などでの移行を経て、最終的に地表環境において核種が流出する場所（たとえば、井戸、河川、海洋など；以下、「GBI 候補」という）を設定することを試みた。この検討を通じて、地表および地質環境のどの特徴が GBI の設定にどのように影響し得るか、たとえば、考慮する地形や地表環境の状態および地下深部から表層までを含む地下水の流動系に応じてどの GBI が候補となるかなどを例示的に整理した（表 3.5-2）。

上記の検討から、GBI 候補の設定に影響を与える要因として、未検出の断層や亀裂の連続性に代表される地下深部の水理特性、塩淡境界の位置、花崗岩風化部や第四紀層内の水理地質特性の重要性が抽出された。また、地下深部の水理解析から得られる表層への地下水の流動方向に基づいて大局的な GBI 候補を推定することが可能であり、さらに物理探査や水文調査、ボーリング調査により花崗岩風化部や第四紀層内の表層地下水流動の把握が進むことによって GBI 候補が絞り込まれることを例示することができた。なお、諸外国の検討例（Wörman, 2003 ; Parkin et al., 1999）でも、GBI 設定における表層の寄与が大きいことなどが示唆されている。また、沿岸部においては、塩淡境界の位置によって GBI 候補自体は変わらないものの、具体的な放出現場が変化することが例示された。さらに、表層の地下水流動の把握に関しては、第四紀堆積物への地下水流出経路および堆積物中における流動経路の把握（たとえば、第四紀堆積物と接する基盤中の亀裂を通じての第四紀堆積物への流入位置、地形に沿った第四紀堆積物中の地下水の流れの存在の確認）などが重要な情報となると推定された。なお、GBI 候補の絞り込みを行う際には、水理解析の結果に含まれる不確実性や季節の変動要因などの影響についても考慮する必要がある。

GBI 設定以外のモデル化に関する検討としては、たとえば、第2次取りまとめ段階では海域に対して沿岸海域堆積層を GBI としたモデル化のみを行ったことに対して、その代替モデルとして潮間帯を GBI としたモデルおよび周辺海洋を GBI としたモデルを構築し、実際の地表環境の特徴に応じて海域をより細分化して評価ができるようにした（加藤ほか、2001b）。また、第2次取りまとめおよびそれ以降の検討では、放射性核種が液相を媒体として生物圏に放出される場合を想定した評価モデルを中心に整備してきたが、実際には、固相を媒体として、隆起・侵食といった物質移動プロセスにより生物圏に放出される場合も想定される。そこで、下部土壌を GBI とする生物圏モデルを構築し、被ばくグループごとの線量への換算係数を算出して支配経路の特定を行った（加藤ほか、2003）。

表3.5-2 仮想的な環境パターンの設定結果とGBI候補の検討結果

環境パターン	環境パターンⅠ	環境パターンⅡ	環境パターンⅢ
概念図			
サイト分類	・ 結晶岩系 (花崗岩) サイト	・ 堆積岩系 (砂岩・泥岩互層の泥岩部) サイト	・ 堆積岩系 (砂岩・泥岩互層の泥岩部) サイト
地理条件	・ 丘陵～沿岸低地	・ 山間部の盆地	・ 丘陵～沿岸低地
水理条件	<ul style="list-style-type: none"> 花崗岩新鮮部では、地下水は花崗岩中の亀裂中を流れる(移流移行)。 花崗岩風化部では、亀裂中の移流移行とマトリクス中の移流移行が混在し、風化の程度・状況に応じてマトリクス中の流れが優勢になる。 地下水の流れは、花崗岩中に発達した大規模な断層をはじめとする亀裂に規制されるが、大局的には地形的に高い山側から沿岸部へと流動する傾向にある。 台地部の花崗岩風化部および平野部の花崗岩風化部とそれを覆う第四紀未固結層はともに不圧帯水層である。 	<ul style="list-style-type: none"> 互層を構成する泥岩層は低透水性で、物質の移行は拡散が支配的である。また、互層を構成する砂岩層では、地下水は主にマトリクス中を流れる。 その他、地下水は互層中の断層部を流れる。 第四紀堆積物を構成する砂および礫(レキ)は高透水性で、良好な帯水層を形成するが、低透水性のシルト～泥質部を形成する部分では不均質な水理特性を示す。 第四紀堆積物中の地下水の流れは、大局的には盆地縁部から盆地中央の河川へと流動する。堆積岩中の地下水は、地形の起伏に従って、山側から沿岸部へと流動する傾向にある。 	<ul style="list-style-type: none"> 互層を構成する泥岩層は低透水性で、物質の移行は拡散が支配的である。また、互層を構成する砂岩層では、地下水は主にマトリクス中を流れる。 その他、地下水は互層中の断層部を流れる。 第四紀堆積物を構成する砂および礫(レキ)は高透水性で、特に主に河成の砂および礫(レキ)から構成される更新統は、丘陵周辺に発達する台地を涵養域として良好な帯水層を形成する。一方、完新統中部の泥質堆積物は難透水性を示し、物質の移行は拡散が支配的である。 第四紀堆積物および堆積岩中には塩淡水境界が形成される。 第四紀堆積物および堆積岩中の地下水は、大局的には地形的に高い山側から沿岸部へと流動する傾向にある。
GBI候補の設定に影響を及ぼす要因	<ul style="list-style-type: none"> 花崗岩中の未検出の断層の存在 花崗岩中の亀裂の連続性 塩淡水境界の位置 花崗岩風化部ならびに第四紀層の水理地質特性(河川による集水、井戸周囲の地下水流動経路など) 	<ul style="list-style-type: none"> 第三紀層内の未検出の断層の存在 第三紀層内の亀裂の連続性 	<ul style="list-style-type: none"> 第三紀層内の未検出の断層の存在 海底下の水理・地質構造(未検出の断層を含む) 塩淡水境界の位置 第四紀層内の地下水流動経路(河川による集水、井戸周囲の地下水流動経路)
抽出されたGBI候補 ／本検討で想定した調査の進展に伴うGBI候補の設定の変遷	<ul style="list-style-type: none"> ① 井戸 ② 河川 ③ 海洋 	<ul style="list-style-type: none"> ① 井戸 ② 河川 	<ul style="list-style-type: none"> ① 井戸 ② 海洋

一方、実際の地表環境の特徴に直接対応するものではないが、第2次取りまとめでの温暖気候の想定に対して、生物圏評価において気候変動の影響を考慮するための簡便なモデル化手法として、冷帯気候やツンドラ気候での降水量の減少に着目し、灌漑水量、浸透／流出量、食物摂取のパラメータを変更することで取り扱う方法を構築し、温暖気候の場合の結果に比べてほとんどの核種において線量への換算係数が低下する傾向にあること、またそれが灌漑水量や浸透／流出量の減少による表面土壌中の核種濃度の減少に関係することを示した（加藤ほか、2001a）。

(ii) パラメータの重要度分析と現在の設定状況の整理

第2次取りまとめおよびそれ以降の検討で用いた生物圏評価パラメータの設定値は、わが国における幅広い地質環境を対象とした評価のために整備されたものである。したがって、実際の地表環境を対象とした評価を行う際には、評価結果に与える影響が大きいものから優先的に、実際の環境での特徴を考慮しつつ適切に設定していく必要がある。その一方で、評価結果に与える影響が小さいものについては、国内外の評価で用いられている文献データなどを用いてパラメータを設定することも可能である。したがって、たとえば、図 3.5-1 に示す概念モデルに基づく評価で用いたような核種ごとに百を超えるパラメータに対して、実際の地表環境が特定された場合に、パラメータ値を迅速かつ効果的に設定するためには、感度分析などの手法を用いて優先的に整備していく必要のあるデータを事前に明らかにしておく必要がある。

そのため、本検討では、まず線量への換算係数に特に影響を与えうるパラメータを抽出することを目的として、以下の条件においてパラメータ不確実性を考慮したモンテカルロシミュレーションを行うとともに、その結果に対して重回帰分析を適用することによる重要パラメータの抽出を行った（図 3.5-2）（核燃料サイクル開発機構、2004；Kato et al., 2004）。

- ・対象核種：Cs-135, Se-79, Np-237（第2次取りまとめにおける総線量に寄与する核種）
- ・核種流入域（GBI）：河川、深井戸、沿岸海域など
- ・サンプリング：パラメータの最大・最小の幅（核燃料サイクル開発機構、1999）からサンプリング
- ・重要パラメータの抽出：重回帰分析の結果により相対的重要度を判断

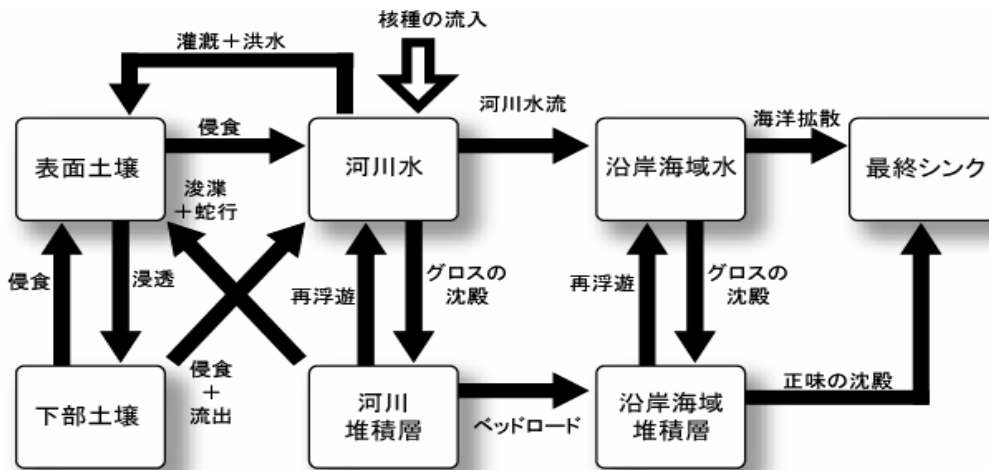
全てのモデル・対象核種についての感度解析および感度分析の結果を総括すると、以下のようになる：

- ・地表環境での核種移行パラメータ（河川水量、灌漑水量、侵食速度、地下水流、海洋拡散量など）、分配係数、農畜産物・海産物への濃縮係数、食物などの摂取量（農作物、海産物、土壌）が相対的重要度の上位を占めた。
- ・パラメータの最大値から最小値の幅での変化により線量への換算係数を1桁以上変動させる（偏回帰係数の絶対値が1以上となる）のは、上位3～4パラメータであった。

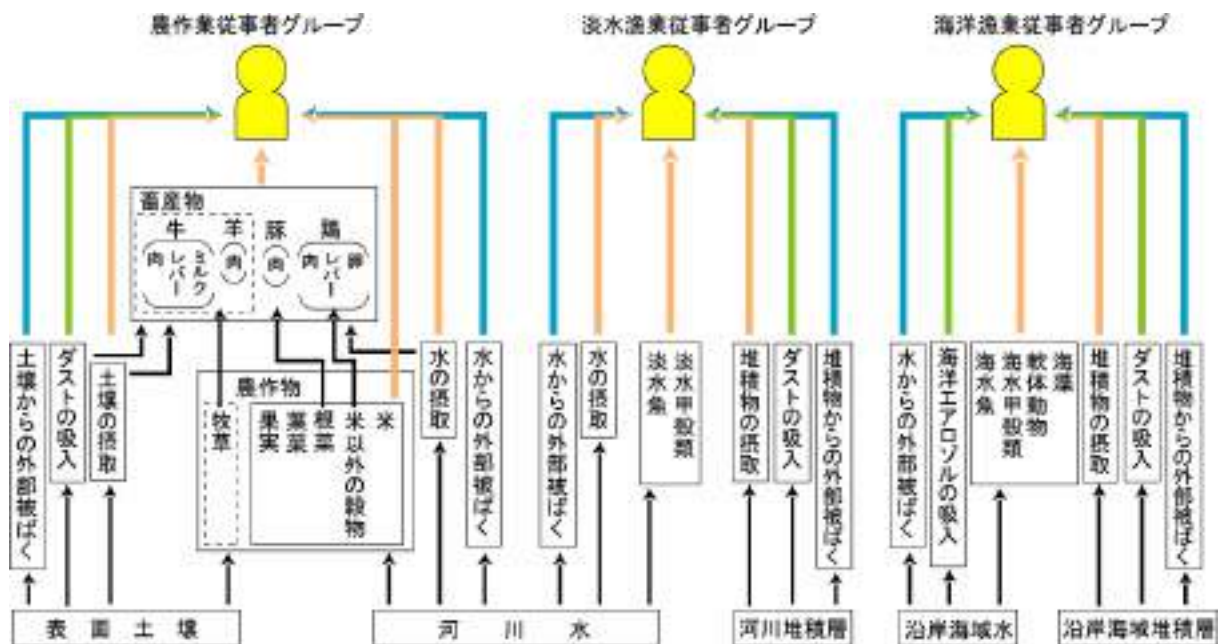
次に、感度分析の結果をもとに、それぞれのモデル・対象核種における相対的重要度の上位10パラメータの現在の設定状況を整理した。その手法としては、地層処分生物圏評価手法に関する国際共同研究 BIOMASS において検討されたデータ選定手法（IAEA, 2003）を参考に、表 3.5-3 に挙げるような観点からパラメータの設定状況を整理した（核燃料サイクル開発機構、2004；Kato et al., 2004）。

整理結果をパラメータの属性と信頼性の2軸にプロットしてまとめたものを図 3.5-3 に示す。このような整理により、相対的重要度の高いパラメータの現在の設定状況を把握することができるようになり、これはデータ取得・整備の優先度などを考えるうえでの基盤的な情報となる。たとえば、今後実際の地表環境を対象としたパラメータの設定を行うことを考えた場合、理想的には全てのパラメータが図 3.5-3 の右上の象限にあることが好ましい（ただし、横軸の「わが国固有」は「サイト固有」に置き換わり、サイトの特徴を反映したデータ

を整備することが理想となる) が、まずは生物圏評価の目的や対象とする場の特徴およびそこで取得可能な情報の種類などを勘案しつつ、検討に着手する段階での各パラメータの設定状況をこの 2 次元空間の位置として把握し、重視するパラメータの抽出とそのパラメータに関して新たに目標とすべき図中の位置を設定することにより、対象とする地表環境に応じた取り組みの方向性や優先度などを明らかにすることができる (たとえば、陸域を対象にするならば、海洋での拡散係数よりも土壌摂取量の情報の充実を優先するなど)。



(a) 物質移行



(b) 被ばく経路

図 3.5-1 地表環境での物質移行と被ばく経路の概念モデル (河川水を GBI としたモデルの例)

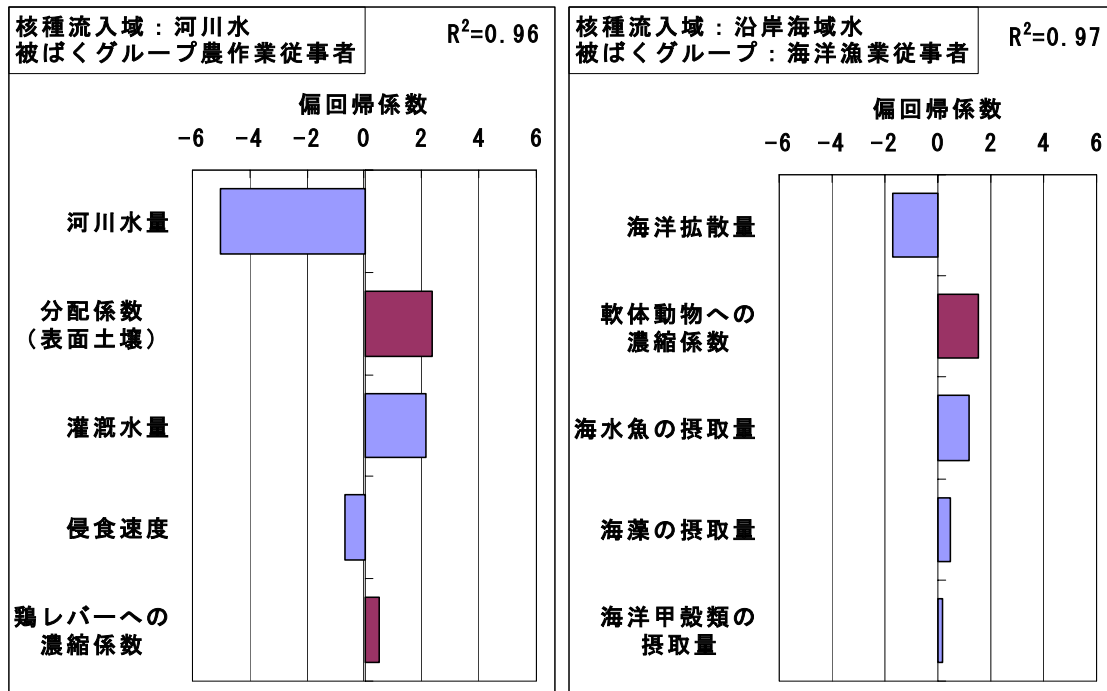


図 3.5-2 モンテカルロシミュレーションの結果に対する感度分析の結果例 (Cs-135)
 ※図中の赤い棒は元素依存パラメータ，青い棒は元素非依存パラメータを示す。

表 3.5-3 生物圏評価パラメータの設定状況の整理の観点 (信頼性, 属性の分類)

		信頼性		
		確定的 ^{3.5-1)} (Prescribed)	十分に特性化されている (Well-characterised) ^{3.5-2)}	特性化が充分ではない (Poorly-characterised) ^{3.5-3)}
パラメータの属性	一般 ^{3.5-4)}	ICRP, IAEA	国内外の推奨データ (例: 放射線防護基準)	特性化が充分ではない国外のデータ
	わが国固有 ^{3.5-5)}	国内の基準	国内統計資料	特性化が充分ではない国内のデータ
	サイト固有	評価の前提条件に基づいて定められるデータ (例: インベントリ情報)	サイト調査データ	特性化が充分ではないサイト固有のデータ

3.5-1) 核種の崩壊定数のように国際的に受け入れられているデータ，あるいは国内の平均値や評価の前提条件に基づいて定められるデータ (たとえば，インベントリ情報など)

3.5-2) 国際的あるいはわが国の研究機関において設定・編纂されたデータや，十分な試験や科学的な処理により得られたデータあるいは詳細なサイト調査プログラムより得られたデータのうち，一般に受け入れられているデータ

3.5-3) 変動幅が大きいデータ，専門家間で十分に議論またはオーソライズされていないデータ，あるいはデータ採取・設定手法が不明瞭なデータ (たとえば，ある核種に関する土壌から作物への移行係数や将来の気象に関するデータなど)

3.5-4) サイトに依存しないデータのほかに，諸外国の評価で用いられているデータもこのカテゴリーに含む

3.5-5) わが国の平均的なもの，あるいは国内のデータ (サイトとは必ずしも一致しない)

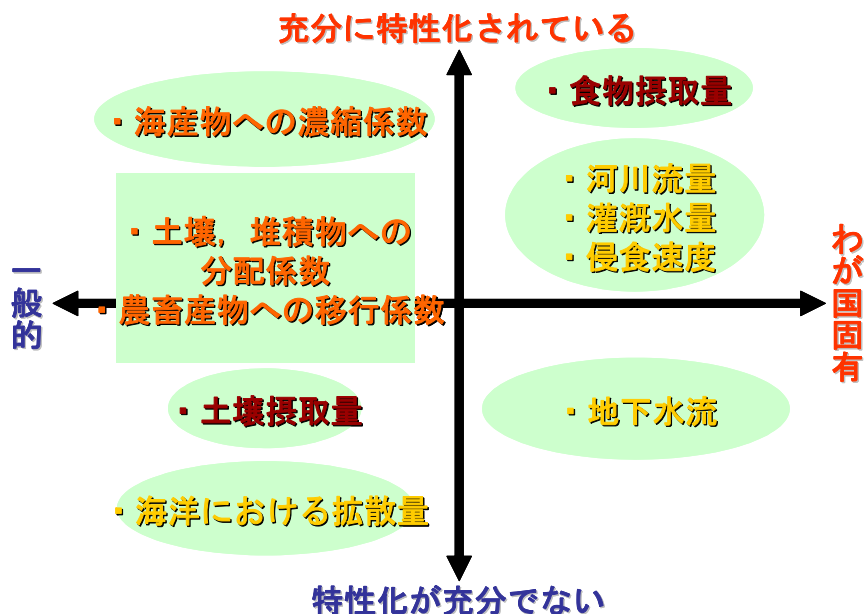


図 3.5-3 第 2 次取りまとめ生物圏評価で用いたパラメータの設定状況の整理結果の例
 注：地下水流とは、地表近傍の帯水層から堆積層を經由して河川や海域などの水域に至る地下水の流れを指す

(iii) 天然放射性核種の濃度，フラックスの検討

(a) 天然放射性核種の濃度およびフラックスに関する情報の収集・整理

天然放射性核種の濃度やフラックスを用いた検討の例としては、以下のものがある。

- ・ 第 2 次取りまとめの性能評価の結果得られた核種の河川中濃度や地下水中濃度と天然放射性核種の濃度との比較（核燃料サイクル開発機構，1999）
- ・ 性能評価の結果得られた核種の地下水中濃度と天然放射性核種の濃度との比較（Neill et al., 1994）
- ・ 性能評価の結果得られた核種フラックスと天然放射性核種のフラックスとの比較（Miller et al., 1996）

そこで、天然放射性核種の濃度やフラックスとの比較を行うために必要な情報として、既存の地球科学関連の研究および環境放射能研究に関する国内文献から、わが国における岩石・土壤・地下水などの媒体に含まれる天然放射性核種（U-238, U-234, Th-232, K-40, Ra-226, Rn-222 など）または化学元素（U, Th, K, Rb, Sn, Cs, Cu）の濃度データ、および侵食速度、河川流量などの地質学的プロセスに関するフラックスデータを収集し、わが国で測定されているデータの範囲を示した。この結果は、IAEA の国際共同研究プロジェクト「放射性廃棄物処分の安全評価における安全指標（濃度，フラックス）の使用」においてわが国の研究状況として情報提供した。

この情報収集により、わが国で取得されている天然放射性核種の濃度の幅を示すことができ、処分場由来の放射性核種濃度と比較する際の情報を拡充することができた。たとえば、第 2 次取りまとめの対象核種（たとえば、U-238, Th-232, Ra-226）について濃度データを拡充したことにより、第 2 次取りまとめで得られた核種濃度と土壤や表層水中に含まれる天然放射性核種濃度の比較をより多くの核種について行うことが可能となった。また、第 2 次取りまとめで対象としなかった核種・元素（たとえば、Rn-222 や Cu）についても必要に応じて検討が可能となった。さらに、(b)で述べる天然放射性核種のフラックスの算出方法の検討の際に必要なデータを整備することができた。

(b) 天然放射性核種のフラックスの算出方法の検討

放射性核種のフラックスの比較に関する既往の検討例 (Miller et al., 1996, 2002) を踏まえて、本検討では、水循環を物質循環の基本とし、集水域に着目した天然放射性核種のフラックスの算出方法を検討することとした。具体的には、天然環境の構成要素を、大気、地表環境、地下環境に分類し、地表環境と地下環境についてはさらに上流域 (涵養域) と下流域 (流出域) に分割したうえで、これら 5 つの場に存在する物質と物質移動プロセスを設定した (図 3.5-4 : 核燃料サイクル開発機構, 2003)。図 3.5-4 に示す物質移動プロセスごとの天然放射性核種のフラックスについては、河川流や風成塵の降下などによるフラックスに (a) で収集・整理した媒体中の核種濃度を乗じた値によって提示されるが、個々のプロセスごとの天然放射性核種のフラックスを合算して、処分場由来の核種のフラックスと比較する際には、評価点や評価領域の設定を適切に行う必要がある。天然放射性核種のフラックス算出方法の考え方については、(a) と同様に IAEA の国際共同研究プロジェクトにおいて情報提供した (IAEA, 2005)。

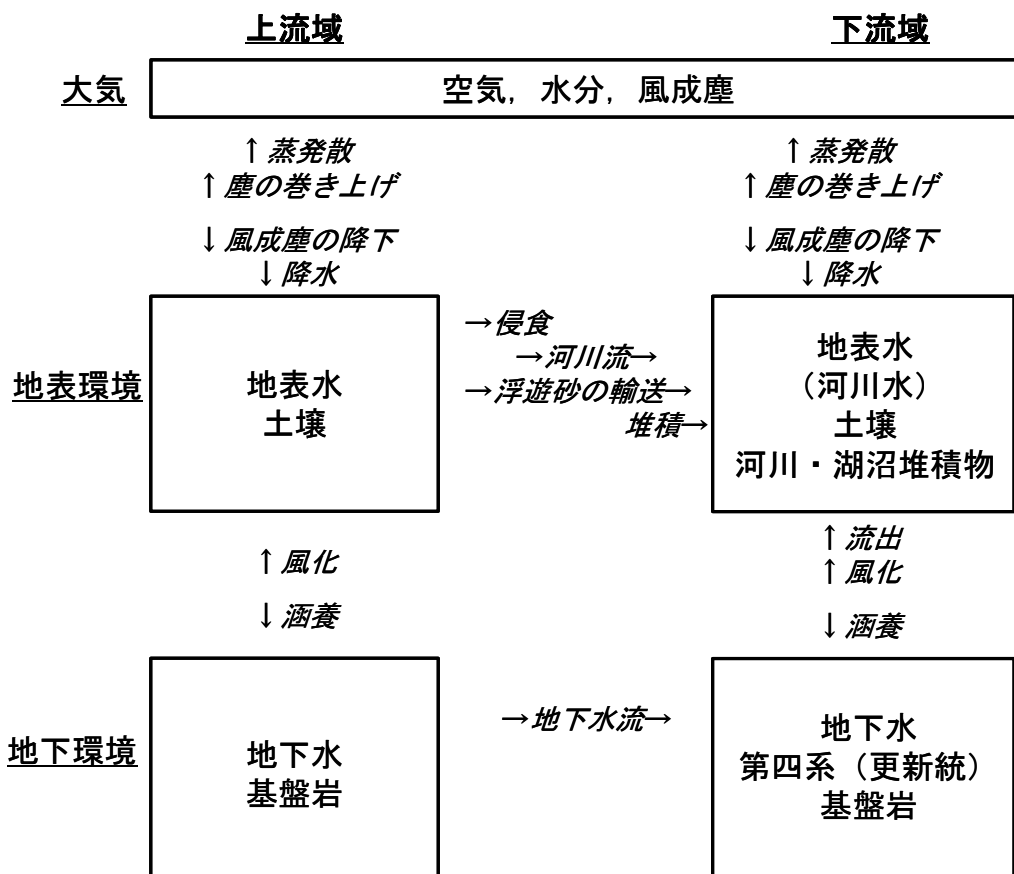


図 3.5-4 天然放射性核種のフラックスの算出方法において考慮した場, 物質および物質移動プロセスの体系

注: ボックスは物質存在の場を, 矢印はボックス間を繋ぐ物質移動プロセスとその方向を示す。イタリック体は物質移動プロセス名を示す。

この検討により、実際の地質・地表環境に対して天然放射性核種のフラックスを検討する際の留意点として以下のものが挙げられた:

- ・わが国の地質・地表環境の特性を反映する観点から、水循環を物質循環の基本とし集水域に着目することが適切と考えられる。

- ・場の特性を踏まえた集水域・評価領域・物質移行プロセスの設定および関連するデータの収集が課題となる。
- ・また一般的な課題として、処分場由来の放射性核種と天然放射性核種のフラックスについて、適切な比較評価がなされるように対比のあり方に注意する必要がある。

(3) 結論

モデル化手法の検討では、第2次取りまとめ段階で簡単な取扱をしていた GBI (たとえば、地表近傍の帯水層の単純化) について、実際の地表および地質環境の主要な特徴を取り込みつつ可能性のある GBI 候補を抽出・設定するための知見と技術の整備を中心に実施した。

検討の結果、地下深部の水理解析から得られる表層への地下水の流動方向に基づいて大局的な GBI 候補を推定することが可能であり、さらに物理探査や水文調査、ボーリング調査により花崗岩風化部や第四紀層内の表層地下水流動の把握が進むことによって GBI 候補が絞り込まれることを例示することができた。ここで、表層の地下水流動の把握に関しては、第四紀堆積物への地下水流出経路および堆積物中における流動経路の把握 (たとえば、第四紀堆積物と接する基盤中の亀裂を通じての第四紀堆積物への流入位置、地形に沿った第四紀堆積物中の地下水の流れの存在の確認) などが重要な情報となると推定された。さらに、GBI 候補の設定で重要となるこれら情報の取得に係る調査項目を概略的に検討し整理した。これらの成果は、GBI 候補の設定において重要となる情報および調査項目を調査側に適切に提案する基盤になる。

パラメータの重要度分析と現在の設定状況の整理については、第2次取りまとめの段階において核種ごとに百を超えるパラメータを同等に検討してきたことに対して、データの不確実性を考慮したモンテカルロシミュレーションと感度分析の組合せにより、評価上の重要性の高いパラメータを把握するとともに、それらパラメータの設定状況の体系的な整理を行った。あわせて、これらの情報を、効果的なデータの取得やパラメータの設定を行うために優先的に取り組むべき調査研究項目の選択と判断にどのように使い得るかを考察した。

これにより、実際の地表環境の特徴に応じて、どの生物圏評価パラメータに関する調査研究に優先的に取り組むべきかなどの選択と判断を総合的かつ効率的に行おうとするときに有用となる情報の整理の考え方や方法とともに、その整理結果の例を提示した。これらの成果は、生物圏データの取得に関して優先的に取り組むべき調査項目を調査側に適切に提案する基盤になる。

また、今後の線量やリスク以外の安全指標を用いた検討に利用可能な基盤的な情報として、天然放射性核種の濃度とフラックスのデータを収集・整理し、第2次取りまとめ段階よりも情報を充実させた。さらに、水循環を物質循環の基本とし集水域に着目した天然放射性核種のフラックスの算出方法を検討した。この検討により、実際の地質・地表環境に対して天然放射性核種のフラックスを検討する際の留意点が挙げられた。これら情報は、国際共同研究で報告することにより利用可能な形とした。

(4) 今後の課題

生物圏評価技術に関する今後の課題としては、生物圏評価モデルおよびパラメータについて、実際の地表環境に適用していくための技術 (特徴の把握、その特徴のモデル化やパラメータ設定への反映、ならびにそれらに必要な調査・試験・解析などの提示) の拡充と体系化を進めるとともに、その技術の適用事例の拡充を図ることが挙げられる。

上記課題に対して以下の取り組みを予定している。

- ・モデル化手法

GBI の設定以外のモデル化要素 (気候変動などの環境条件の変化を含む) を含めて、生物圏評価の観点から着目すべき地表環境の主要な特徴を取り込んでモデルを構築する

ための手法の拡充・整備を行う。このとき、環境中の汚染物質の挙動などに関する既存の研究成果も参考にするとともに、これまでの GBI の設定に関する検討において考慮しなかった環境の特徴（たとえば、地表を覆う土壌など）についても、必要に応じて考慮した検討を行う。

・パラメータ設定

重要パラメータの抽出とそれらの現在の設定状況の整理を継続・拡充する。また、実際の地表環境の特徴を適切に反映できるかどうかについて整理したうえで、現段階からデータ取得などの対応を進めておくべき事項があればその具体的な提案を行う。

なお、上記取り組みについては、当面はわが国での幅広い地表環境を対象とし、その特徴に関する既存情報を用いた手法・技術の拡充・整備を中心に進めていくこととするが、それとあわせて、深地層の研究施設計画などからの実際の地表環境についての利用可能な情報の拡充（たとえば、表層の状態、地下水流動状況）と連動してモデル化手法などの適用性の確認と改善を行うこと、さらには将来、概要調査地区などの実際の地表および地質環境に関する情報が得られれば、そこでの特徴を対象とした検討にも拡大していきたいと考えている。

一方、天然放射性核種の濃度とフラックスのデータについては、空間的な変動性なども勘案しつつ文献などからの情報収集・整理を継続する。また、線量やリスク以外の安全指標の適用の考え方や評価手法については、国内外での検討状況を踏まえつつ対象とすべき検討課題の具体的な抽出・絞り込みなどを行う。

参考文献

Abelin, H., Neretnieks, I., Tunbrant, S., and Moreno, L. (1985): "Migration in a single fracture : Experimental results and evaluation, final report, Stripa project", Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), STRIPA TR 85-03.

赤池広次 (1976): "情報量基準 AIC とは何か その意味と将来への展望", 数理科学, No.153, pp.5-11.

Altman, S. J., Uchida, M., Tidwell, V. C., Boney, C. M. and Chambers, B. P. (2001): "Visualization and Quantification of Heterogeneous Diffusion Rate in Granodiorite Samples by X-Ray Absorption Imaging", Sandia National Laboratory, SAND2001-1842.

天野健治, 岩月輝希, 上原大二郎, 佐々木圭一, 竹内真司, 中間茂雄 (2003): "広域地下水流動研究 年度報告書 (平成 14 年度)", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7400 2003-002.

Ames, L.L., McGarrah, J.E. and Walker, B.A.: Basalt-Radionuclide Reactions (1981): "FY-1981 Annual Report - Prepared for Rockwell Hanford Operations", RHO-BW-CR-127-P/PNL-3992.

有馬立身, 出光一哉, 夏暁杉, 石寺孝充, 飯島和毅 (2004): "緩衝材中の鉄イオン及びネプツニウムイオンの拡散挙動", 核燃料サイクル開発機構, JNC TY8400 2004-005.

Arthur, R. C., Sasamoto, H., Shibata, M., Yui, M. and Neyama, A. (1999): "Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations", Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-079.

Arthur, R. C., Sasamoto, H. and Yui, M. (2004): "Potential complications in the development of a thermodynamic database for hyperalkaline, argillaceous systems", in Proceedings of the international workshop on bentonite-cement interaction in repository environments (R. Metcalfe and C. Walker, eds), Nuclear Waste Management Organization of Japan, NUMO-TR-04-05, pp. A3-91-A3-94.

Arthur, R. C., Sasamoto, H., Oda, C., Honda, A., Shibata, M., Yoshida, Y. and Yui, M. (2005): "Development of Thermodynamic Databases for Hyperalkaline, Argillaceous Systems", Japan Nuclear Cycle Development Institute, in preparation.

東侍郎, 柴田雅博, 油井三和, 澁谷朝紀, 能登屋信, 吉田泰 (1999): "地層処分研究開発第2次とりまとめにおける放射性元素の溶解度評価", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-071.

Benes, P., Kratzer, K., Vlckova, S. and Sebestova, E. (1998): "Adsorption of Uranium on Clay and the Effect of Humic Substances", Radiochimica Acta, Vol.82, pp.367-373.

Berg, R. R. (1975): "Capillary Pressure in Stratigraphic Traps", AAPG Bul. Vol.59., No.6, pp.939-956.

Berner, U (1995): "KRISTALLIN-I : Estimates of Solubility Limits for Safety Relevant Radionuclides", Paul Scherrer Institut, Bericht Nr. 95-07.

Berner, U (2002): "Project Opalinus Clay: Radionuclide Concentration Limits in the Near-Field of a Repository for Spent Fuel and Vitrified High-Level Waste", Paul Scherrer Institut, Bericht Nr. 02-22.

Bethke, C. M. (1996): Geochemical reaction modeling, Oxford University Press, ISBN 0-19-509475-1.

BIOMOVS II (1996): "Development of a Reference Biospheres Methodology for

Radioactive Waste Disposal”, BIOMOVS II Technical Report No.6, Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm, Sweden.

Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (2000): “A Generalised Sorption Model for the Concentration Dependent Uptake of Caesium by Argillaceous Rocks” *Journal of Contaminant Hydrology*, 42, pp.141-163.

Bryant, W. R., Hottman, W. and Trabant, P. (1975): “Permeability of unconsolidated and consolidated marine sediments, Gulf of Mexico”, *Marine Geo-technology*, Vol.1, p.113.

Carrera, J. and Neuman, S. P. (1986a): “Estimation of aquifer parameters under transient and steady state conditions:1. Maximum likelihood method incorporating prior information”, *Water Resources Research*, Vol.22, No.2, pp.199-210.

Carrera, J. and Neuman, S. P. (1986b): “Estimation of aquifer parameters under transient and steady state conditions:2. Uniqueness, stability, and solution algorithms”, *Water Resources Research*, Vol.22, No.2, pp.211-227.

Carrera, J. and Neuman, S. P. (1986c): “Estimation of aquifer parameters under transient and steady state conditions:3. Application to synthetic and field data”, *Water Resources Research*, Vol.22, No.2, pp.228-242.

Cave, M. R. and Harmon, K. (1997): “Determination of Trace Metal Distributions in the Iron Oxide Phases of Red Bed Sandstones by Chemometric Analysis of Whole Rock and Selective Leachate Data”, *Analyst*, Vol.122, pp.501-502.

Cave, M. R. and Wragg, J. (1997): “Measurement of Trace Element Distributions in Soils and Sediments Using Sequential Leach Data and a Non-specific Extraction System With Chemometric Data Processing”, *Analyst*, Vol.122, pp.1211-1221.

Chinju, H., Kuno, Y., Nagasaki, S. and Tanaka, S (2001): “Deposition Behavior of Polystyrene Latex Particles on Solid Surface during Migration through an Artificial Fracture in a Granite Rock Sample”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 38, No. 6, pp.439-443.

Crank, J. (1975): *The Mathematics of Diffusion*, Clarendon Press, Oxford.

Curti, E., Gordon, N. and Vernaz, E.Y. (1993): “Enhancement of the Glass Corrosion in the Presence of Clay Minerals: Testing Experimental Results with an Integrated Glass Dissolution Model”, *Material Research Society, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI*, pp163-170.

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 (2005): “TRU 廃棄物処分技術検討書ー第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめー平成 17 年 7 月”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TY1400 2005-002.

Deutsch, C. V. and Journel, A. G. (1998): *GSLIB – Geostatistical Software Library and User’s Guide*, Oxford Univ. Press, New York, Second Edition.

独立行政法人産業技術総合研究所ホームページ: 岩石標準試料データベース, <http://www.aist.go.jp/RIODB/geostand/welcomej.html>, RIO-DB.

動力炉・核燃料開発事業団 (1987): “貯蔵工学センター立地環境調査ー深層ボーリング報告書”, 動力炉・核燃料開発事業団, PNC TJ1027 98-012.

Elert, M. and Svensson, H. (2001): “Evaluation of modelling of the TRUE-1 radially converging tests with sorbing tracers”, *Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), TR-01-12*.

Finsterle, S. and Persoff, P. (1997): “Determining permeability of tight rock samples using inverse modeling”, *Water Resource Research*, Vol.33, No.8, pp.1803-1811.

Finsterles, S. and Najita, J. (1998): “Robust estimation of hydrogeologic model parameters”, Water Resource Research, Vol.34, No.11, pp.2939-2947.

Fleming, S. W. (1999): “Single and Multiple Rate of Nonequilibrium Diffusive Mass Transfer at the Laboratory”, Field and Regional Scales in the Culebra Member of Ruster Formation, New Mexico, Master Thesis from Oregon State University, June.

Fredrickson, J. K. and Fletcher, M. (eds.) (2001): Subsurface Microbiology and Biogeochemistry, Wiley-Liss Inc.

Geckeis, H and Missana, T. (Eds): “The CRR Final Project Report Series: 2 – Results of the Supporting Laboratory Programme, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra), NTB 03-02 (in preparation).

原子力安全委員会 (2002): “高レベル放射性廃棄物処分の概要調査地区選定段階において考慮すべき環境要件について—平成14年9月30日—”.

原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会 (2004): “放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について”.

原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会 (2000): “高レベル放射性廃棄物の処分に係る安全規制の基本的考え方について (第1次報告)” .

原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会 (2000): “高レベル放射性廃棄物の処分に係わる安全規制の基本的考え方について”, p10.

原子力安全委員会 特定放射性廃棄物処分安全調査会 (2002): “高レベル放射性廃棄物処分の概要調査地区選定段階において考慮すべき環境要件について”.

原子力発電環境整備機構 (2004): “高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性—「処分場の概要」の説明資料—”, 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-04-01.

Gorgeon, L (1994): “Contribution a la Modelisation Physico-Chimique de la Retention de Radioelements a vie Longue par des Materiaux Argileux” , PhD. Thesis, l'Universite Paris 6.

Grambow, B. (1985): “A General Rate Equation for Nuclear Waste Glass Corrosion, Material Research Society”, Scientific Basis for Nuclear Waste Management VIII, pp15-27.

Grambow, B., Lutze, W. and Müller, R. (1992): “Empirical Dissolution Rate Law for the Glass R7T7 Contacting Hilite- and Silica-saturated Brines, Material Research Society”, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XV, pp143-150.

Haggerty, R. S. and Gorelick, S. M. (1998): “Modeling Mass Transfer Processes in Soil Column with Pore Scale Heterogeneity”, Soil Sci. Soc. Am. J., Vol.62, pp.62-74.

花室孝広, 天野健治, 三枝博光, 佐藤稔紀, 竹内真司, 中間茂雄, 濱克宏, 池田幸喜, 中野勝志, 大澤英昭, 茂田直孝 (2002): “超深地層研究所計画 年度報告書 (平成13年度)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7400 2002-004.

畑明仁, 井尻裕二, 細野賢一, 澤田淳 (2004): “原位置トレーサー試験の逆解析による同定パラメータ値の不確実性評価”, 原子力バックエンド研究, Vol.10, No.1-2, pp.47-56.

畑中耕一郎, 内田雅大, 下茂道人, 山本肇, 熊本創 (2004): “亀裂を有する堆積性軟岩の水理・物質移行特性評価に関する実験的研究”, 日本原子力学会「2004年春の年会」要旨集, H3, p.809.

IAEA (1989): “Guidance for Regulation of Underground Repositories for Disposal of Radioactive Wastes”, Safety Series Report No.96, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.

IAEA (1994): “Safety Indicators in Different Time Frames for the Safety Assessment of Underground Radioactive Waste Repositories, First Report of the INWAC Subgroup on Principles and Criteria for Radioactive Waste Disposal”, International Atomic Energy Agency, IAEA-TECDOC-767.

IAEA (2003): “Reference Biospheres for solid radioactive waste disposal, Report of BIOMASS Theme 1 of the BIOSphere Modelling and ASSESSment (BIOMASS) Programme”, Part of the IAEA Co-ordinated Research Project on Biosphere Modelling and Assessment (BIOMASS), IAEA-BIOMASS-6.

IAEA (2005): “Natural Activity Concentrations and Fluxes as Indicators for the Safety Assessment of Radioactive Waste Disposal”, IAEA-TECDOC, in preparation.

Ibaraki, M. and Sudicky, E. A. (1995a): “Colloid-Facilitated Contaminant Transport in Discretely Fractured Media, 1. Numerical Formulation and Sensitivity Analysis”, Water Resources Research, Vol.31, pp.2945-2960.

Ibaraki, M. and E. A. Sudicky, E. A. (1995b): “Colloid-Facilitated Contaminant Transport in Discretely Fractured Media, 2. Fracture Network Example”, Water Resources Research, Vol.31, pp.2961-2969.

市川康明, 河村雄行, 中野政詩, 北山一美 (1999): “分子シミュレーション法と均質化法の結合解析 高レベル放射性廃棄物の地層処分における緩衝材挙動への適用”, 日本原子力学会誌, Vol.41, pp.88-97.

一国雅巳 (1972): 無機地球科学, 無機化学シリーズ14, 培風館, p.67.

Iijima, A. and Utada, M. (1971): “Present-Day Zeolitic Diagenesis of the Neogene Geosynclinal Deposits in the Niigata Oil Field, Japan”, Molecular Sieve Zeolites, Vol.1, pp.342-349.

飯島東 (1978): “沸石続成作用”, 地質学論集, No.15, pp.135-150.

飯島和毅, 増田嗣也, 戸村努 (2004): “ベントナイトコロイドに対する Cs の収着挙動”, サイクル機構技報, Vol.23, pp.51-61.

飯島和毅, 飛塚早智子, 小原幸利 (2004): “Np(IV)とフミン酸の錯生成挙動”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-005.

井尻裕二, 澤田淳, 赤堀邦晃 (1999a): “我が国の岩盤の水理特性について”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-090.

井尻裕二, 澤田淳, 坂本和彦, 亘真吾, Erik K. Webb, 中島研吾, 長坂和佳, 野邊潤 (1999b): “多孔質岩盤を対象とした天然バリア中の核種移行解析”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-092.

井尻裕二, 安達哲也, 鈴木俊一, 大石雅也, 杉原豊 (2001): “核種移行逆解析プログラムの作成”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8440 2001-002.

井尻裕二, 畑明仁, 細野賢一, 澤田淳 (2004): “原位置トレーサー試験により得られる核種移行パラメータ値の不確実性について”, 土木学会論文集, No. 778/III-69, pp.85-97.

今井久, 前田信行, 塩崎功, 雨宮清, 千々松正和 (2002): “幌延深地層研究計画における地下水流動解析に関する検討”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ1400 2002-004.

Inagaki, Y., Furuya, H., Idemitsu, K. and Yonezawa, S. (1994): “Corrosion behavior of a powdered simulated nuclear waste glass: A corrosion model including diffusion process”, Journal of Nuclear Materials, Vol.203, pp.27-34.

Inagaki, Y. Idemitsu, K., Arima, T., Maeda, T., Ogawa, H. and Itonaga, F. (2002): “Alteration-phase formation and associated cesium release during alteration of R7T7

waste glass”, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXV, pp589-596.

稲垣八穂広 (2002): “ガラス固化体の長期鉍物化に関する研究(I)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2002-052.

稲垣八穂広 (2003): “ガラス固化体の長期鉍物化に関する研究(II)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2003-014.

稲垣八穂広, 三ツ井誠一郎, 牧野仁史, 石黒勝彦, 亀井玄人, 河村和廣, 前田敏克, 上野健一, 馬場恒孝, 油井三和 (2004): “高レベルガラス固化体の性能評価に関する研究—現状と信頼性向上に向けて—”, 日本原子力学会バックエンド部会誌, 10(1-2), p69.

稲垣八穂広 (2004): “ガラス固化体の長期鉍物化に関する研究(III)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2003-055.

稲垣八穂広 (2005): “ガラス固化体の長期鉍物化に関する研究(IV)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2004-019.

井上博之, 石黒健, 久慈雅栄, 吉野尚人 (2004): “堆積岩地域の特徴を考慮した地下水流動現象の解明とモデル化に関する研究”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2004-013.

石寺孝充, 宮本真哉, 佐藤治夫 (2004): “圧縮ベントナイト中の C, Cl, I の拡散挙動に及ぼすケイ砂混合率及び NaNO₃ の影響”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-001.

石寺孝充, 佐藤治夫 (2005a): “凝灰岩中の CO₃²⁻, Cl, I の拡散挙動に及ぼす NaNO₃ の影響(仮題)”, 核燃料サイクル開発機構 (準備中).

石寺孝充, 佐藤治夫 (2005b): “花崗岩の Cs, I の拡散挙動に及ぼす塩濃度の影響(仮題)”, 核燃料サイクル開発機構 (準備中).

磯貝武司, 神徳敬, 笹本広 (2004): “圧縮ベントナイト中の間隙水測定手法の検討”, 原子力バックエンド研究, Vol.11, No.1, pp.29-36.

伊藤一誠, 唐崎健二, 畑中耕一郎, 内田雅大 (2004): “間隙水圧観測結果を用いた逆解析による堆積岩地域の水理地質構造把握—幌延深地層研究計画サイトへの適用—”, 応用地質, Vol.45, No.3, pp.125-134.

Iwatsuki, T., Sato, K., Seo, T. and Hama, K. (1995): “Hydrogeochemical investigation of groundwater in the Tono area, Japan”, Material Research Society Symposium Proceedings, Vol.353, pp.1251-1257.

神徳敬, 柴田雅博, 吉田泰, 陶山忠宏 (2003): “収着試験結果に対するモデル適応性検討”, 日本原子力学会「2003年春の年会」要旨集, O15, p.860.

Johnson, J. W., Oelkers, E. H. and Helgeson, H. C. (1992): “SUPCRT 92: A software package for calculating the standard molal thermodynamic properties of minerals, gases, aqueous species, and reactions from 1 to 5000 bars and 0 to 1000°C, Computers and Geosciences, 18, pp.899-947.

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

核燃料サイクル開発機構 (2003): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発—平成14年度報告—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2003-004.

核燃料サイクル開発機構 (2004): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発—平成15年度報告—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2004-007.

核燃料サイクル開発機構 研究開発課題評価委員会 (2000): “平成12年度研究開発課題評価

(中間評価) 報告書, 評価課題「高レベル放射性廃棄物地層処分研究の全体計画案」平成12年11月”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1440 2000-009.

Kamei, G., Yusa, Y. and Arai, T. (2000): “A natural analogue of nuclear waste glass in compacted bentonite”, *Applied Geochemistry*, 15, pp.141-155.

亀井玄人 (2000): “茂原ガス田の地下水中有機酸”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2000-030.

金持真理子, 久野義夫, 油井三和 (1999): “圧密ベントナイトに対する有機物の透過試験”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-080.

兼清豊比古 (1999): “北海道北部における地質環境データ収集・整理”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ1440 99-005.

菅野卓治 (1995): “フミン物質の性質と核種移行への影響”, *放射性廃棄物研究*, Vol.1, pp.131-162.

菅野毅, 福永栄, 石井浩介, 栃木 善克, 油井三和, 吉川英樹, 吉田泰, 青木和弘, 工藤章, 加藤憲二, 難波謙二, 宮坂郁, Wang, Y. (2004): “革新的実用原子力技術開発提案公募事業「地層処分に及ぼす微生物影響のシミュレーションに関する技術開発」”, (財)エネルギー総合工学研究所.

加藤智子, 石原義尚, 鈴木祐二, 内藤守正, 石黒勝彦, 池田孝夫, Little, R. (2001a): “気候変動による影響を取り入れた地層処分安全評価の生物圏モデルの検討”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2001-003.

加藤智子, 鈴木祐二, 石黒勝彦, 内藤守正, 池田孝夫, Little, R. (2001b): “海域を核種放出域とする地層処分生物圏評価の代替モデルに関する検討”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2001-013.

加藤智子, 鈴木祐二 (2003): “汚染土壌の削剥を考慮した地層処分安全評価生物圏モデルの検討”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-008.

Kato, T., Suzuki, Y., Makino, H. and Uchida M. (2004): “Biosphere Assessment for High-level Radioactive Waste Disposal: Modelling Experiences and Discussion on Key Parameters by Sensitivity Analysis in JNC”, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*, pp.465-472, ISBN 4-9980604-6-5 C3040.

河村雄行, 市川康明, 鈴木覚, 柴田雅博, 佐藤治夫, 上野健一 (2002): “緩衝材特性評価モデルの高度化に関する基礎研究 —分子動力学法により緩衝材のマイクロ挙動解析および均質化法による緩衝材のマイクロ・マクロ解析—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TY8400 2002-015.

河村雄行 (2005): “ベントナイト中の物質移行モデルの高度化研究(III)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-028.

Kersting, A. B., Efurud, D. W., Finnegan, D. L., Rokop, D. J., Smith, D. K. and Thompson, J. L. (1999): “Migration of Plutonium in Groundwater at the Nevada Test Site”, *Nature*, 397, pp.56-59.

木村進一, 鹿園直建, 野原昌人 (2003): “堆積岩の化学組成及び同位体組成より推定した古日本海海洋環境”, *地学雑誌*, Vol.112, pp.586-607.

Kitamura, A. and Kohara, Y. (2002): “Solubility of Np(IV) in Carbonate Media”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Suppl. 3, pp.294-297.

北村暁, 戸村努 (2003): “還元条件・炭酸共存下におけるスメクタイトに対するネプツニウムの収着挙動”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-025.

北村暁, 中田弘太郎, 田中知, 戸村努, 亀井玄人 (2004): “マグネタイト表面におけるネプツ

ニウム(V)の還元反応に関する研究”, サイクル機構技報, No.22, pp.59-66.

甲川憲隆, 向井悟, 神徳敬, 佐藤治夫, 笹本広 (2005): “花崗岩質岩石におけるマトリクス拡散”, 日本原子力学会「2005年秋の大会」予稿集.

Kohler, M., Honeyman, B. D. and Leckie, J. O. (1999): “Neptunium(V) Sorption on Hematite ($\text{-Fe}_2\text{O}_3$) in Aqueous Suspension: The effect of CO_2 ”, *Radiochimica Acta*, 85, pp.33-48.

小崎完 (2003): “緩衝材中の核種移行挙動に対する粘土の幾何学的微細構造の影響に関する研究(III)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2002-053.

小崎完, 佐藤正知 (2004): “緩衝材中の核種移行挙動に及ぼす処分環境因子に関する基礎的研究”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2003-075.

Krige, D. G. (1952): “A statistical approach to some basic mine valuation problems in the Witwatersrand”, *Journal of Chemical, Metallurgical and Mining Society of South Africa*, No.53(3), pp.47-70.

Kruyt, H. R. (Ed.) (1963): *Colloid Science* (3rd reprint), Elsevier Publishing Company.

Kuno, Y., Kamei, G. and Ohtani, H. (2002): “Natural Colloids in Groundwater from a Bentonite Mine - Correlation between Colloid Generation and Groundwater Chemistry -”, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol.713, pp.841-848.

黒澤進, 佐々木良一, 上田真三, 吉川英樹 (2004): “COLFRAC を利用した性能評価に及ぼす微生物の影響に関する研究”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-012.

澤進, 茨木希, 油井三和, 上田真三, 吉川英樹 (2004a): “核種移行に及ぼすコロイドへの核種収着速度の影響, -実験と数値解析-”, *原子力と文論文誌*, Vol.3, pp.249-256.

黒澤進, 茨木希, James, S., 油井三和, Alexander, R. (2004b): “グリムゼル岩盤試験場におけるコロイドと核種の移行遅延実験に関する解析”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2004-016.

Kurosawa, S., Ibaraki, M., Yui, M., Ueta, S. and Yoshikawa, H. (2004): “Experimental and Numerical Studies on Colloid-Enhanced Radionuclide Transport, -The Effect of Kinetic Radionuclide Sorption onto Colloidal Particles-”, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol.824, pp.473-478.

黒澤進 (2005): “高レベル放射性廃棄物地層処分における核種移行評価に及ぼすコロイドの影響 - 2次取りまとめ以降の検討 - (仮題)”, 核燃料サイクル開発機構 (準備中).

Laaksoharju, M., Skarman, C. and Skarman, E. (1999): “Multivariate mixing and mass-balance (M3) calculations, a new tool for decoding hydrogeochemical information”, *Applied Geochemistry*, Vol. 14, 7, pp.861-871.

Langmuir, D. (1997): *Aqueous Environmental Geochemistry*, Prentice Hall, ISBN 0-02-367412-1.

Lemire, R.J., Fuger, J., Nitsche, H., Potter, P., Rand, M.H., Rydberg, J., Spahiu, K., Sullivan, J.C., Ullman, W.J., Vitorge, P. and Wanner, H. (2001): “Chemical Thermodynamics of Neptunium and Plutonium”, Elsevier, Amsterdam.

Littleboy, A. K., Degnan, P. J., Mcleod, R. S. and Norris, S. (1998): “Site characterization strategy and its role in post closure performance assessment”, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol.506, pp.719-730.

Luukkonen, A. and Kattilakoske, E. (2001): “Groundwater Flow, Mixing and Geochemical Reactions at Aspo HRL, Task 5. Aspo Task Force on Groundwater Flow and Transport of Solutes”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB),

IPR-02-41.

牧野仁史, 吉田隆史 (1996): “ガラス固化体の溶解及びそれに伴う緩衝材中の核種移行に関する感度解析”, 動力炉・核燃料開発事業団, PNC TN8410-093.

Mattigod, S. V. and McGrail, B. P. (1999): “Estimating the Standard Free Energy of Formation of Zeolites using the Polymer Model”, Microporous and Mesoporous Materials, 27, pp.44-47.

Mazurek, M., Bossart, P. and Hermanson, J. (2001): “Classification and Characterization of Water Conducting Features at Äspö”, Proc. Intern. Seminar First True Stage, Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden, September 11-13, Stockholm, Sweden.

Mazurek, M. and Jacob, A. (2001): “Evidence for matrix diffusion in the TRUE-1 Block at Äspö based on fracture characterization and modeling of tracer tests”, Geological Evidence and Theoretical Bases for Radionuclide Retention, Workshop Proceedings, Oskarshamn, Sweden, 7-9 May 2001, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Paris.

Meece, D. E. and Benninger, L. K. (1993): “The coprecipitation of Pu and other radionuclides with CaCO_3 ”, *Geochimica et Cosmochimica Acta* 57, pp. 1447-1458.

Miller, B., Smith, G., Savage, D., Towler, P. and Wingefors, S. (1996): “Natural Radionuclide Fluxes and their Contribution to Defining Licensing Criteria for Deep Geological Repositories for Radioactive Wastes”, *Radiochimica Acta*, 74, pp. 289-295.

Miller, W., Alexander, W., Chapman, N., McKinley, I. and Smellie, J. (2000): “Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues”, Waste Management Series, Vol.2, Pergamon, Amsterdam.

Miller, B., Lind, A., Savage, D., Maul, P. and Robinson, P. (2002): “Natural Elemental Concentrations and Fluxes: Their Use as Indicators of Repository Safety”, Swedish Nuclear Power Inspectorate (SKI), 02:3; The Swedish Radiation Protection Authority (SSI), 2002:03.

Mills, R. (1973): “Self-diffusion in Normal and Heavy Water in the Range 1-45 °”, *Journal of Physical Chemistry*, Vol.77, pp.685-688.

Möri, A., Alexander, W.R., Geckeis, H., Hauser, W., Schafer, T., Eikenberg, J., Fierz, Th., Degueldre, C. and Missana T. (2003): “The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock”, *Colloids Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, Vol.203, pp.33-47.

中野政詩 (1991): 土の物質移動学, (財)東京大学出版会.

中野勝志, 竹内真司, 濱克宏, 松井裕哉, 池田幸喜, 天野健治, 山内大祐, 大澤英昭, 長谷川健, 杉原弘造, 武田精悦 (2001): “超深地層研究所計画の現状—平成8年度～平成11年度—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7400 2001-001.

中屋眞司, 金屋賢生, 長谷川明生, 平山鉄浩 (1995): “亀裂性岩盤の透水係数テンソルの測定と水理学的等価開口幅”, 地下水学会誌, Vol.37, No. 1, pp.13-29.

中山一夫 (1991): “モデルシミュレーションを用いた堆積層の形態解析”, 中川久夫教授退官記念地質学論集, pp.191-202.

中澤俊之, 岡田賢一, 室井正行, 吉川英樹, 鐵 剛志, 吉田泰(2004):“炭酸塩生成時の放射性核種の共沈現象に関するデータ取得およびモデル開発”, 日本原子力学会「2004年春の年会」要旨集, p855.

Neall, F. B.(ed.), Baertschi, P., McKinley, I.G., Smith, P.A., Sumerling, T. and Umeki, H. (1994): “Kristallin-I Results in Perspective”, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra), NTB93-23.

日本分析化学会北海道支部 (1981):水の分析,第3版,化学同人.

新見健, 野口義文, 堀田政國 (1992): “花崗岩盤における割れ目流れに関する基礎研究”, 第24回岩盤力学シンポジウム講演論文集, pp.21-25.

小田治恵, 磯貝武司, 佐藤光吉, 柴田雅博 (1999):“圧縮ベントナイト間隙水pH測定(II)―雰囲気制御下における樹脂埋め込み測定―”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-015.

小田治恵, 柴田雅博 (1999): “ベントナイトー水相互作用の実験とモデル化”,核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-032.

小田治恵, 本田明, 佐々木良一, Savage, D., Arthur, R.C. (2005): “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 (準備中).

Oda, M. (1985): “Permeability tensor for discontinuous rock masses”, *Geotechnique*, Vol.35, No.4, pp.438-495.

Oda, M., Hatsuyama, Y. and Ohnishi, Y. (1987): “Numerical experiments on permeability tensor and its application to jointed granite at Stripa Mine, Sweden” , *Journal of Geophysical Research*, Vol.92, No.B8, pp.8037-8048.

OECD/NEA (2001): “The Use of Thermodynamic Databases in Performance Assessment”: Workshop Proceedings, Barcelona, Spain, 29-30 May 2000, Hosted by Enresa, OECD.

OECD/NEA (2002): “Establishing and Communicating Confidence in the Safety of Deep Geologic Disposal”, Approaches and Arguments, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Paris, France.

OECD/NEA (2004): “Geological Disposal : Building Confidence Using Multiple Lines of Evidence”, First AMIGO Workshop Proceedings, Yverdon-les-Bains, Switzerland, 3-5 June 2003, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Paris, France.

小川弘道, 長尾誠也, 山口徹治, 向井雅之, 宗像雅弘, 坂本義昭, 中山真一, 武田聖治, 木村英雄, 熊田政弘, 村岡進 (2001): “地層中における地下水の移行性と放射性核種の移行挙動 カナダ原子力公社との協力研究の成果”, 日本原子力研究所, JAERI-Research 2000-052.

大貫敏彦 (2002): “地層処分における微生物の影響ー研究の現状と今後の課題ー”, 原子力バックエンド研究, Vol.9, pp.35-42.

Parkhurst, D. L., Thorstenson, D. C., Plummer, L. N. (1980): “PHREEQE – A computer program for geochemical calculations, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigations Report 80-96.

Parkhurst, D.L. (1995): “PHREEQC - User's Guide to PHREEQC - A Computer Program for Geochemical Calculations”, U.S. Geological Survey, Water - Resources Investigations Report 95-4227.

Parkhurst, D. L. and Appelo, C. A. J. (1999): “Users guide to PHREEQC (version 2) – A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations”, U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigation Report 99-4259.

Parkin, G., Anderton, S. P., Ewen, J., O'Donnell, G. M., Thorne, M. C. and Crossland, I. G. (1999): “A physically based approach to modeling radionuclide transport in the biosphere”, *Journal of Radiological Protection*, Vol.19, No.4, pp.319-331.

Pedersen, K. (2000): “Exploration of deep intraterrestrial microbial life: Current

perspectives, FEMS Microbiology Letters, 185, pp.9-16.

Rai, D., Moore, D. A., Oakes, C. S and Yui, M. (2000): "Thermodynamic model for the solubility of thorium dioxide in the Na^+ - Cl^- - OH^- - H_2O system at 23°C and 90 °C" Radiochimica Acta, Vol. 88(5) pp 297-306.

Rai, D., Yui, M., Moore, D. A. (2002): "Solubility and solubility product at 22°C of $\text{UO}_2(\text{cr})$ precipitated from aqueous U(IV) solutions", Journal of Solution Chemistry, 32, pp.1-17.

Rai, D., Hess, N. J., Yui, M., Felmy, A. R. and Moore, D. A. (2004): "Thermodynamic and solubility of $(\text{U}_x\text{Np}_{1-x})\text{O}_2(\text{am})$ solid solution in the carbonate system", Presented at Migration 03.

Rhén, I. and Smellie, J. (2003): "Task force on modeling of groundwater flow and transport of solutes Task 5 Summary report", Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), TR-03-01.

斉藤拓巳, 長崎晋也, 田中知 (2004): "腐植物質への金属イオン結合挙動のモデル化: 離散のおよび連続的親和定数分布モデルの比較", 日本原子力学会和文論文誌, Vol.3, pp.215-232.

佐治慎一, 伊藤雅和, 柴田雅博, 神徳敬, 磯貝武司 (2005): "河川水と接触したベントナイト鉱床の化学特性変化", 核燃料サイクル開発機構 (準備中).

佐々木詔雄 (1990): "本邦油田地域の後期新生海成層における沸石化作用", 石油技術協会誌, Vol.55, No.1, pp.1-14.

Sasamoto, H., Yui, M. and Arthur, R. C. (1999): "Hydrochemical investigation and status of geochemical modeling of groundwater evolution at the Kamaishi in-situ tests site, Japan, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-033.

Sasamoto, H., Yui, M. and Arthur, R. C. (2005): "Estimation of in-situ groundwater chemistry using geochemical modeling: A test case for saline type groundwater in argillaceous rock, Abstracts for international meeting on clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement, pp.259-230.

笹尾英嗣, 中間茂雄, 竹内真司, 岩槻輝希 (2003): "東濃鉱山における調査試験研究粘土報告書 (2002年度)", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7400 2003-001. Sato, H., Ashida, T., Kohara, Y., Yui, M. and Sasaki, N. (1992): "Effect of Dry Density on Diffusion of Some Radionuclides in Compacted Sodium Bentonite", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 29, pp.873-882.

Sato, H., Shibutani, T., Tachi, Y, Ota, K., Amano, K. and Yui, M. (1997): "Diffusion behavior of Nuclides Considering Pathways in Fractured Crystalline Rocks", Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, PNC TN8410 97-127.

Sato, H. (1998): "Data Setting for Effective Diffusion Coefficients (D_e) of Nuclides in the Buffer for Reference Case in Performance Assessment of the Geological Disposal of High-Level Radioactive Waste (I)", Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, PNC TN8410 98-097.

Sato, H. (2001): "The Effect of Pore Structural Factors on Diffusion in Compacted Sodium Bentonite", Material Research Society Symposium Proceedings., Vol.663, pp.605-615.

佐藤治夫 (2003a): "堆積岩系マトリックス中のイオン拡散移行過程に関する研究: 幌延泥岩の物理化学的特性評価", 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2003-003, pp.114-128.

佐藤治夫 (2003b): "堆積岩系岩石マトリックス中のイオンの拡散移行過程に関する研究: 砂岩微細間隙中での Cs 及び I の拡散移行挙動と固液界面モデル", 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ1400 2003-022.

佐藤治夫 (2003c): “堆積岩系岩石マトリックス中のイオンの拡散移行過程に関する研究: バッチ法による砂岩への Cs⁺及び I⁻イオンの収着分配係数の測定”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ1400 2003-012.

Sato, H. (2004): “Diffusion and Migration of Ions in Sedimentary Rock Matrix: Effects of Ionic Strength and Tracer Concentration on diffusion of Cs⁺ ion in Sandstone”, Material Research Society Symposium Proceedings., Vol.807, pp.597-602.

佐藤久, 武部篤治 (2004): “10cm スケールの単一亀裂を対象としたトレーサー試験方法の改良”, 第 59 回土木学会年次学術講演会, CS1-014, pp.27-28.

Schlumberger (1989): “Log Interpretation Principles /Applications”, Schlumberger Educational Services, pp.3-8.

Sheppard, J. C., Campbell, M. J., Kittvick, J. A. and Hardt, T. L. (1979): “Retention of Neptunium, Americium and Curium by Diffusible Soil Particles”, Environmental Science and Technology, Vol.13, pp.680-684.

柴田雅博, 陶山忠宏 (2003): “緩衝材の鉄型化に関する予察解析”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-007.

鹿園直建 (2001a): “水-岩石反応による地下水中の主要化学成分組成の変化(I)-化学平衡とマスバランス”, 地下水学会誌, Vol.43, No.3, pp.149-159.

鹿園直建 (2001b): “水-岩石反応による地下水中の主要化学成分組成の変化(II)-反応速度と流動の影響”, 地下水学会誌, Vol.43, No.3, pp.161-170.

嶋田三朗, 梨本裕, 松井幹雄, 相木克介 (1990): “浸透流確率有限要素法”, 前田技術研究所報, Vol.30, pp.25-34.

下茂道人, 山本肇 (1996): “等価不均質連続体モデルによる亀裂性岩盤の浸透流解析手法”, 大成建設技術研究所報, pp.257-262.

Shimo, M., Yamamoto, H., Uchida, M., Sawada, A., Doe, T. W., and Takahara, Y. (1999): “In-situ test on fluid flow and mass transport properties of fractured rocks”, Proc. 9th ISRM Congress, Vol. 2, pp. 1401-1404.

下茂道人, 山本肇, 熊本創 (2003): “亀裂を有する軟岩中の流れと移行現象に関する研究”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2003-028.

下茂道人, 熊本創 (2004): “亀裂を有する軟岩中の流れと移行現象に関する研究(II)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2004-011.

新藤静夫, 井伊博行 (1995): “表層における地下水流動”, 放射性廃棄物と地質科学 (島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男編), 東京大学出版会.

Silliman, S. E. (1989): “An Interpretation of the differences between aperture estimates derived from hydraulic and tracer in single fracture”, Water Resources Research, Vol.25, No.10, pp.2275-2283.

総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 (2003): “廃棄物安全小委員会報告書-高レベル放射性廃棄物処分の安全規制に関わる基盤確保に向けて”, 平成15年7月8日.

杉崎隆一, 吉本泰介, 加藤喜久雄, 杉浦孜 (1963): “南関東ガス田の地球化学的考察-とくにガス成分と鉱床の存在状態との関連について-”, 地質学雑誌, Vol.69, No.809, pp.67-81.

鈴木覚, 藤島敦, 上野健一, 市川康明, 河村雄行, 藤井直樹, 柴田雅博, 佐藤治夫, 北山一美 (2001): “圧縮ベントナイトの微細構造のモデル化と MD-HA 結合解析法の拡散問題への適用”, 粘土科学, Vol.41, pp.43-57.

Suzuki, S., Sato, H., Ishidera, T. and Fujii, N. (2004): “Study on Anisotropy of Effective

Diffusion Coefficient and Activation Energy for Deuterated Water in Compacted Bentonite” *Journal of Contaminant Hydrology*, 68, pp.23-37.

Svensson,U. (1999): “Äspö HRL Task Force on Modeling of Groundwater Flow and Transport of Solutes” , Data delivery No 11, Pressure and salinity boundary conditions, Task No 5 - Integration of hydrology and chemistry.

Sverjensky, D.A. and Molling, P.A. (1992): “A linear free energy relationship for crystalline solids and aqueous ions”, *Nature*, 356, pp. 231-234.

Tachi, Y., Shibutani, T., Sato, H. and Yui, M. (1998): “Sorption and Diffusion Behavior of Selenium in Tuff”, *Journal of Contaminant Hydrology*, 35, pp.77-89.

高須重紀, 梅木博之, 内藤守正, 増田純男 (1999):“地層処分システム性能評価における補完的安全指標の適用性に関する検討”, 日本原子力学会「1999年春の年会」要旨集, p.783.

武部篤治, 澤田淳, 内田雅大, 山本朝男, 村岡保, 佐藤成二 (2004): “亀裂の不均質性を考慮した流体・物質移動解析評価”, 第 59 回土木学会年次学術講演会, CS1-021, pp.41-42.

武田信従, 星一良, 鈴木優, 安田善雄 (1992): “油田水に含まれる有機酸について”, *Res. Org. Geochem.*, Vol.8, pp.47-49.

田中達也, 渡辺邦夫, 前川恵輔, 中村直昭 (1994): “地質構造を基礎としたフラクチャーネットワークモデルの開発 (その 1)－解析の考え方－”, *応用地質*, Vol.35, No.3, pp.22-33.

田中靖治 (1998): “岩盤水理特性の評価法と確率論的浸透流解析に関する研究” , 東京大学博士論文.

Tesoriero, A. J. and Pankow, J. F. (1996): “Solid solution partitioning of Sr²⁺, Ba²⁺, and Cd²⁺ to calcite”, *Geochimica et Cosmochimica Acta* 60, pp.1053-1063.

鐵桂一, 澤田淳(2001): “高粘性流体を用いた天然亀裂岩体の透水試験—NETBLOCK 試験報告—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8430 2001-006.

鐵桂一, 澤田淳, 内田雅大 (2004a): “亀裂交差部に沿った方向の透水特性の評価”, サイクル機構技報, No.23, pp.63-70.

鐵桂一, 澤田淳, 内田雅大 (2004b): “研削による岩体亀裂開口部測定”, 第 59 回土木学会年次学術講演会, CS1-013, pp.25-26.

Therrien, R. and Sudicky, E. A. (1996): “Three-dimensional analysis of variably-saturated flow and solute transport in discretely-fractured porous media” , *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.23, pp.1-44.

Thompson, J.B.Jr. (1967): “Thermodynamic properties of simple solutions”, in P.H. Ableson, ed., *Researches in Geochemistry* Vol. 2, New York, Wiley and Sons, pp. 340-361.

飛塚早智子, 小原幸利, 飯島和毅, 佐藤治夫 (2003): “還元条件における Np の溶解度に及ぼすフミン酸の影響”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2003-018.

飛塚早智子, 菊池広人, 松本一浩, 飯島和毅, 佐藤治夫 (2005):“高イオン強度における圧縮ベントナイトに対する有機物の透過試験”, 核燃料サイクル開発機構 (準備中).

枋山修, 高須重紀, 池田孝夫, 木村英雄, 佐藤正知, 長崎晋也, 中山真一, 新堀雄一, 古屋廣高, 三頭聰明, 山口徹治 (1998): 核種移行モデルにおける収着分配係数の概念とその適用性, 原子力バックエンド研究, Vol.5, No.1, pp.3-19.

枋山修, 新堀雄一, 田中紘一, 守屋由介, 油井三和, 柴田雅博, 鐵剛志 (2002): “固体－水相互作用の下での金属含水酸化物の沈殿・結晶化の速度機構”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TY8400 2002-014.

鳥養祐二 (1996): “地層処分工学障壁材ベントナイト中の水の特性評価に関する研究”, 博士論文, 北海道大学, pp.111-137.

Tsang, C. F. and Karasaki, K. (1999): “JNC-DOE Collaborative Program on Mass Transport: Characterization and Predictive Technologies”, 1998-1999 Annual Report, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TY8400 99-001.

Tsang, C. F. and Karasaki, K. (2000): “JNC-DOE Collaborative Program on Mass Transport: Characterization and Predictive Technologies”, 1999-2000 Annual Report, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TY8400 2000-007.

Tsang, C. F. and Karasaki, K. (2001): “JNC-DOE Collaborative Program on Mass Transport: Characterization and Predictive Technologies”, 2000-2001 Annual Report, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TY8400 2001-006.

Tsang, C. F. and Karasaki, K. (2002): “JNC-DOE Collaborative Program on Mass Transport: Characterization and Predictive Technologies”, 2001-2002 Annual Report, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TA8400 2002-001.

Tsang, Y. W. and Tsang, C. F. (2000): “A Particle Tracking Method for Advective Transport in Fractures with Diffusion into Finite Matrix Blocs”, Water Resources Research, 37(3), pp.831-835, LBNL-42634.

Uchida, M., Dershowitz, W., Sawada, A., Wallmann, P. and Thomas, A. (1997): “FracMan Discrete Fracture Modeling for the Äspö Tunnel Drawdown Experiment”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), ICR-97-03, Stockholm.

内田雅大, 吉野尚人 (2001): “亀裂状媒体水理試験設備 (LABROCK) 用試験岩体の切り出し・整形”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8410 2001-015.

内田雅大, Dershowitz, B., Metcalfe, R., Shuttle, D., Cave, M., 竹内真司 (2002): “地下水水質変化を考慮した水理解析の試み—スウェーデンエスポ地下研究施設での例—”, 第 11 回岩の力学国内シンポジウム論文集, D05.

上田真三, 加藤博康, 黒澤進, 中澤俊之 (2000): “核種移行評価データの信頼性確認”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2000-002.

上田真三, 黒澤進 (2002): “地下水中に存在するコロイドの特性評価に関する研究”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2001-052.

上田真三, 久野義夫 (2003): “核種移行に関する基礎データ構築手法の検討および個別モデルの高度化に関する研究”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ8400 2003-065.

Wersin, P. (2003): “Geochemical modeling of bentonite porewater in high-level waste repositories”, Journal of Contaminant Hydrology, Vol.61, pp.405-422.

Winberg, A., Andersson, P., Hermanson, J., Byegård, J., Cvetkovic, V. and Birgersson, L. (2000): “Final report of first stage of the tracer retention understanding experiments”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), TR-00-07.

Winberg, A., Andersson, P., Byegård, J., Dershowitz, B., Doe, T., Hermanson, J., Meier, P. and Tullborg, E. (2002): “Final Report of the TRUE Block Scale Project 1. Characterisation and model development”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), TR-02-15, etc.

Wold, S. and Eriksen, T. E. (2000): “Diffusion of organic colloids in compacted bentonite”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SKB), TR-00-19.

Wörman, A. (2003): “Exchange processes at geosphere-biosphere interface—Current SKB approach and example of coupled hydrological-ecological approach”, The Swedish

Radiation Protection Authority (SSI), 2003:14.

Xia, X., Shibata, M., Kitamura, A. and Kamei, G. (2004a): “A systematic Study on Cesium Sorption on a Sedimentary Rock towards Reliable Safety Assessment Methodology for HLW Disposal”, Advances in Nuclear and Radiochemistry: Extended Abstracts of Papers presented at the Sixth International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC-6), 29 August to 3 September 2004, Aachen, Germany, in cooperation with University of Cologne, GDCh, FECS, OECD-NEA and IAEA, edited by Syed M. Qaim and Heinz H. Coenen, pp.779-781.

Xia, X., Shibata, M. and Kamei, G. (2004b): “海水系地下水条件下での堆積岩に対するセレンの収着”, 日本原子力学会バックエンド部会, 第20回バックエンド夏期セミナー資料集, ポスター7.1-7.9.

Xia, X., Kamei, G., Iijima, K. and Shibata, M. (2005): “Selenium Sorption in a Sedimentary rock/saline Groundwater System and Spectroscopic Evidence”, in preparation.

山田直之, 鐵桂一, 澤田淳(2001): “実岩体を用いた透水試験—NETBLOCK 試験報告—”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8430 2001-003.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘道, 田所照夫, 岩間彦衛, 名合牧人, 熊本創 (2002a): “幌延研究センターにおける試錐調査 (HDB-1 孔)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ1400 2002-010.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘通, 田所照夫, 岩間彦衛, 名合牧人, 熊本創 (2002b): “幌延深地層研究センターにおける試錐調査(HDB-2 孔)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ1400 2002-011.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘通, 名合牧人, 田所照夫, 久慈雅栄 (2003a): “幌延深地層研究計画における試錐調査(HDB-4 孔)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ5420 2004-004.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘通, 名合牧人, 田所照夫, 久慈雅栄 (2003b): “幌延深地層研究計画における試錐調査(HDB-3 孔)”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ5420 2004-003.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘通, 名合牧人, 田所照夫, 中垣真一 (2004a): “幌延深地層研究計画における試錐調査(HDB-6,7,8 孔)のうち HDB-6 孔”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ5400 2005-004.

山本卓也, 下茂道人, 藤原靖, 服部弘通, 名合牧人, 田所照夫, 中垣真一 (2004b): “幌延深地層研究計画における試錐調査 (HDB-6,7,8孔) のうちHDB-7孔”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TJ5400 2005-005.

吉田泰, 油井三和 (2003): “熱力学データベースフォーマット変換プログラムの作成”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2002-024.

吉田泰, 吉川英樹, 中澤俊之 (2004): “炭酸塩固相に対する微量元素の共沈メカニズム解明に関する研究”, 日本原子力学会「2004年秋の大会」予稿集, p674.

吉田泰, 吉川英樹, 佐藤智文 (2005): “炭酸塩固相に対する微量元素の共沈反応についての固溶体モデルによる評価”, 日本原子力学会「2005年春の年会」要旨集, p681.

Yoshikawa, H., Futakuchi, K., Hiroki, M. and Yui, M. (2005): “Natural analogue of nuclear waste glass in a geologic formation – Study on long-term behavior of volcanic glass shards collected from drill cores”, Japan Atomic Energy Research Institute, in preparation.

吉野尚人, 佐藤久, 内田雅大 (2002):“亀裂状媒体水理試験設備(LABROCK)による天然亀裂内の水理・物質移行特性評価”, サイクル機構技報, No.18, pp.51-58.

吉野尚人, 澤田淳 (2002):“逆解析による核種移行パラメータ同定値の信頼性評価”, 第 57 回土木学会年次学術講演会, pp.435-436.

Yoshino, N., Sawada, A. and Sato, H. (2003):“An examination of aperture estimation in fractured rock”, Internatioal Workshop on X-ray CT for Geomaterials, pp229-234.

吉野尚人, 澤田淳, 内田雅大, 青山裕司, 高瀬博康 (2003): “セルオートマトン法による流体・物質移動解析手法の開発”, 第 58 回土木学会年次学術講演会, CS7, pp.403-404.

吉野尚人, 澤田淳, 松井幹雄, 伊藤節男, 野本康介 (2004): “不均質場における地下水流動の不確実性評価手法の開発—特定移行経路における移行距離の不確実性評価—”, 第 59 回土木学会年次学術講演会講演概要集, CS1-020, pp.39-40.

Yui, M., Azuma, J. and Shibata, M. (1999): “JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-level Radioactive Waste Disposal System”, Japan Nuclear Cycle Development Institute, JNC TN8400 99-070.

Yui, M., Sasamoto, H. and Arthur, R. C. (2004): “Geostatistical and geochemical classification of groundwaters considered in safety assessment of a deep geological repository for high-level radioactive wastes in Japan”, Geochemical Journal, vol.38, pp.33-42.

Zyvoloski, G., Kwicklis, E., Eddebarh, A.A., Arnold, B., Faunt, C., and Robinson, B.A., (2003): “The site-scale saturated zone flow model for Yucca Mountain: calibration of different conceptual models and their impact on flow paths”, Journal of Contaminant Hydrology, 62-63, pp.731-750.

4. 安全評価手法の整備・高度化

本章では、1.4.1 項で示した課題と進め方を踏まえて、安全評価の追跡性や透明性の向上および技術情報の円滑な共有を通じた安全評価の品質の保証を目的として実施した「安全評価手法の整備・高度化」に関する検討について、以下の項目ごとにこれまでの成果をまとめる。

- ・シナリオに関する技術の高度化（4.1 節）
- ・不確実性評価技術の高度化（4.2 節）
- ・技術情報の統合技術（4.3 節）

4.1 シナリオに関する技術の高度化

シナリオについては、4.1.1 項において、主に処分システム内部での挙動を FEP (Features, Events, Processes) を用いて表現するための技術の検討、4.1.2 項において、処分システム外部からの擾乱となる天然現象の影響をシナリオおよび評価に取込むための技術の検討を行う。これらの技術は、将来的にはシナリオ解析の方法論として統合することを目指しているが、現段階ではそれぞれの基盤技術の検討を中心に実施している。

4.1.1 シナリオ解析技術の高度化

(1) はじめに

安全評価におけるシナリオは、サイト選定や処分場の設計に基づいて設定される地層処分システムの将来挙動を記述し、安全評価の枠組みを与えるものである。

第 2 次取りまとめでは幅広い地質環境を対象として、国際的なコンセンサスの得られている体系的なアプローチを踏襲しながら FEP に基づくシナリオの作成を行った。

第 2 次取りまとめ以降の、わが国におけるシナリオに関する検討を整理すると以下のようになる（たとえば、原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会、2000；総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会、2003；原子力発電環境整備機構、2004）。

- ・第 2 次取りまとめに示す評価シナリオの作成手順などは、立地点に関しても適用できる。
- ・地下水シナリオを安全評価の第一義的なシナリオとし、科学的合理性のある範囲で設定する。
- ・可能な限り網羅的に安全評価の対象となり得る事項（FEP）を特定し、そこでの FEP 相互の影響関係を物質移行のモデルに反映する。
- ・シナリオの作成過程で生じる不確実性に対して、個々の作業内容や FEP の選択などの意思決定に関する判断根拠の追跡性や透明性を確保した体系的なアプローチが必要。

また、シナリオに関する最新の国際的な議論（たとえば、OECD/NEA, 2001）では、以下のことが指摘されている。

- ・シナリオ開発においては、評価に必要な科学的そして技術的な情報の整理と統合を行うことが重要である。これは、FEP の同定、科学的理解に基づくモデル化、そして解析ケースの選定までを含む。また、シナリオ開発は、解析ケースやその結果について、見逃しや知識の欠如に起因する偏りあるいは不足も含めて議論するための全体的なフレームワークを提供する。
- ・可能性のあるシナリオの全てを完全に列挙することは不可能であり、シナリオ開発においては、合理的な十分性を目指すことが重要である。また、シナリオ開発プロセスの透明性が重要であり、方法や結果が追跡できること、オープンであることおよび簡単であること（結果が複雑な場合でも、方法は明確に述べることができること）が重要である。
- ・シナリオ開発における体系的なアプローチの採用は、FEP の取扱いおよび種々の判断や決定を記録に残すルールを与え、何が評価に含まれたか／含まれないかをフォーマルに提示することができる。

- ・シナリオ開発は、それを実施する事業側と科学的専門家、安全規制側あるいは公衆との交流のインターフェイスとなる。またこのような交流を通じてシナリオ開発の十分性などがチェックされる。

以上の国内外の議論の状況、および第 2 次取りまとめのドラフトに対する国際レビュー (OECD/NEA, 2000) において、シナリオから解析ケースを設定する流れについてよりわかりやすくすべきとの指摘を受けたことを鑑み、実際の地質環境を対象としたシナリオ解析を実施する前に検討を行っておくべき技術的課題として以下を設定した。

一定の評価を受けた第 2 次取りまとめでの手順などを基盤としつつ、特に地下水シナリオの作成、それに引き続くモデル作成および解析ケースの設定をシナリオ解析の対象として含め、そこでの個々の作業プロセスの効率化、および作業内容や判断根拠の追跡性と透明性の確保・向上を図ることに重点をおいた手法の改良と適用性の確認を行う。

ここでは、上記課題に関する検討の一環として行ってきた FEP の取扱いの向上に関する検討について述べる。

(2) 研究内容

(i) シナリオ解析手法の改良点の抽出

シナリオ解析に関する作業プロセスは図 4.1.1-1 に示すように、複数のプロセスから構成される。第 2 次取りまとめでも基本的に同様なプロセスを採用しているが、その中で主に「FEP の整備」から「シナリオの構築」までをシナリオに関する作業として行った。

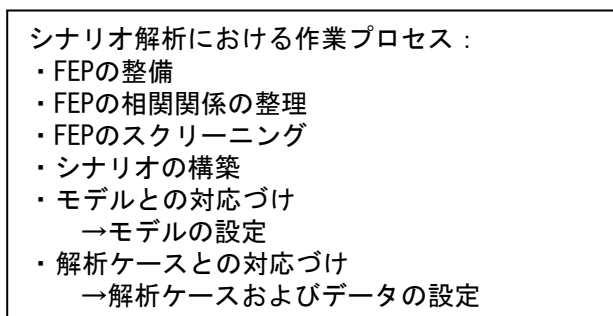


図 4.1.1-1 シナリオ解析の作業プロセス

この中で、百を超える FEP の相関関係を整理する処理は、図 4.1.1-1 の作業プロセス全体に関係する重要な作業であるとともに、第 2 次取りまとめでのシナリオの検討・構築の経験からも最も複雑で時間を要する作業であった。また、(1)で述べた第 2 次取りまとめの国際レビューにおける指摘も、FEP に関する処理の追跡性と透明性を向上させるべきという指摘と考えることができる。

以上のことから、(1)において課題として設定したシナリオ解析手法の改良と適用性の確認に向けての取組みとして、まず FEP の相関関係の整理を中心とする FEP の取扱いの向上に資する技術開発を行うこととした (核燃料サイクル開発機構, 2002)。

なお、この検討においては、(1)で述べた国際的な議論 (たとえば、OECD/NEA, 2001) で指摘されている、シナリオ開発プロセスの追跡性と透明性の確保、および作業の内容や判断などの明確化についても対応できるように留意した。

さらに、実際の地質環境を対象としたシナリオ解析においては、対象とする地質環境の条件や現象に関する理解の進展に応じて、シナリオの検討をくり返し行う必要が生じることとなり、このようなくり返しの作業にも対応できるように留意した。このことは、シナリオ開

発は、プロジェクトの進展の中で見直されていくことが期待される（OECD/NEA, 2001）との指摘とも整合する。

本検討では、FEPの取扱いの向上のための技術開発を行うためのポイントを以下のように設定した。

- ① 百を超えるFEPの複雑な相関関係を、作業しやすくかつ追跡しやすい形で整理・表現する仕組みとする。あわせて、合理的な十分性を達成しやすい仕組みとする。
- ② FEPの相関関係の整理・表現を検討する段階から下流側の作業であるモデル作成や解析ケースの設定につながりやすくすることに配慮する。
- ③ 作業のプロセスや内容および判断を記録する際に、それらの情報を作業プロセスの様々なところに分散させるのではなく、追跡しやすいようになるべく一ヶ所に集約する仕組みとする。

(ii) FEPの取扱い向上のための手法の概念

- (i)で示した3つのポイントに対応するためのFEPの取扱い手法として、
- ・相関関係のマトリクス形式での整理
 - ・階層化

を特徴とする概念を構築した。相関関係のマトリクス形式での整理は、ポイント①～③のすべてに関係するものであり、一方階層化は主にポイント①と②に関係するものである。以下に、これらの概念を示す。

(a) 相関関係のマトリクス形式での整理の概念

FEPの相関関係については、FEPを矢印でつなぎフロー形式で整理するプロセス・インフルエンシブ・ダイアグラム(PID)を用いた表現が従来から行われてきた。第2次取りまとめでもPIDを用いてFEPの相関関係を整理・表現した。これに対して、本検討では、FEPの相関関係をマトリクス形式により整理することとした(核燃料サイクル開発機構, 2003)。本検討で考慮するマトリクスは、すべてのFEPを対角要素に配置するのではなく、FEPのうち、場の特性や状態を表すFeatures(以下、「特性FEP」という)を対角要素に配置し、それら特性FEP間での影響の伝播に関するプロセスや事象を表すProcessesやEvents(以下、「プロセスFEP」という)を対角要素間の交点となる非対角要素に配置するという特徴を持つ(図4.1.1-2)。この考え方は、SKB(スウェーデン)でのTHMCダイアグラムの考え方(SKB, 1999)と一部共通している。

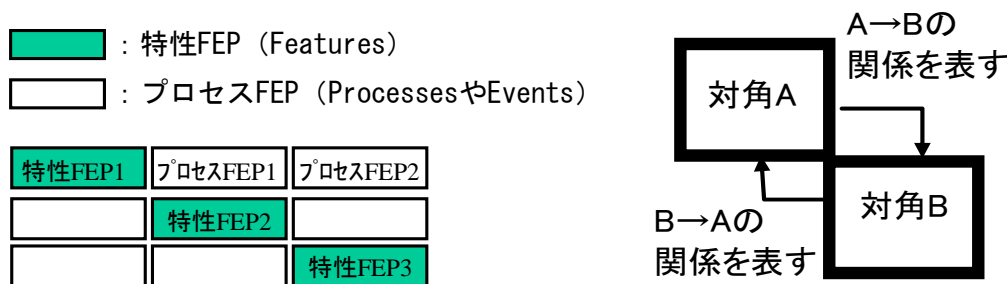


図 4.1.1-2 相関関係のマトリクス形式での整理のイメージ

FEPの相関関係をこのようなマトリクス形式(以下、「相関関係マトリクス」という)で整理する考え方を導入することにより、以下の利点がある。

- ・マトリクスの対角要素にすべてのFEPを配置する場合に比べて、マトリクス自身の大きさをコンパクトにすることができる。
- ・マトリクスの構造を活かして、要素ごとに他の要素との関係をひとつひとつ確認しながら相関関係を整理することができるため、重要な相関関係の見落としなどの可能性を小

さくし十分性を向上させることができる。また、個々の相関関係が明示されその意味が明確になる。

- ・ 相関関係を有する特性 FEP およびプロセス FEP が、マトリクスのある領域に集約されるため、構造的にそのまとまりの意味が分かりやすくなる。
- ・ 特性 FEP およびプロセス FEP が構造的なまとまりを有することは、評価で用いる各モデルが有する入力プロセスに応じた内部処理－出力の関係と対応しやすくなる。
- ・ 相関関係がマトリクスで構造的に整理されるため、PID を用いて相関関係を整理する場合に必要となる、FEP を配置しそれらを相関関係に応じて矢印でつなぐという煩雑な作業が不要になり、FEP の追加や相関関係の変更にも対応しやすくなる。また、FEP に関する作業のプロセスや内容および判断の記録を相関関係マトリクスと関係づけながら記録することが容易となる。

ここで、相関関係マトリクスでの整理は、上記のように個々の相関関係が確認しやすいこと、モデルとの対応がつきやすいこと、作業のプロセスや内容および判断を記録しやすいこと、作業の繰り返しにも対応しやすいこと、さらには後述するように計算機上に展開しやすいことなどの利点がある反面、多数の FEP の相関関係により表現される結果を全体的かつ具体的に理解しようとする場合には必ずしも十分であるとはいえない。この点については次項で述べる。

(b) 階層化の概念

(a)で課題としてあげた、多数の FEP の相関関係により表現される結果を全体的かつ具体的に理解することについては、FEP とその相関関係から積み上げ式にシナリオを構築するという従来のアプローチに加えて、システムの性能あるいはそれへの影響という結果側からの視点を導入することが考えられる。この結果側からの視点としては、システムの性能に直結したものが適切と考え、システムの各要素に期待する機能を表す安全機能を用いることとした(核燃料サイクル開発機構, 2004)。安全機能を用いることは、FEP に比べて要素の数が少ないことから適切と考える。

このような階層化の概念を(a)で述べた相関関係マトリクスの概念と結合することにより、FEP に関する取扱い方法として以下の概念が構築できる。

- ・ FEP の相関関係と同様に、安全機能の発現あるいは擾乱要因の影響を相関関係マトリクスを用いて表現することにより、安全機能の相関関係を整理する。
- ・ この安全機能に関するマトリクスに対して、FEP に関するマトリクスは、個々の安全機能の発現や低下のメカニズムとその程度あるいは擾乱要因の影響のメカニズムをより詳細なレベルで表現するものと位置づけ、この2つのマトリクスを図 4.1.1-3 (右図)に示すように階層構造的に関係づける。
- ・ この階層構造の中では、安全機能の相関関係の結果として表現されるシステムの性能(たとえば、各バリア外側での移行率の低減)をさらに上位の層として位置づけることができる。
- ・ 以上の方法により、安全評価の最終的な目標であるシステム性能を安全機能の相関関係を用いて全体的に表現しつつ、個々の安全機能の発現や低下あるいは擾乱要因の影響を FEP レベルで詳細に記述するという構造的かつ包括的な枠組みを FEP の処理に与えることができる。このことは、FEP や安全機能のそれぞれの相関関係の十分性を相互に確認しながら向上させること、およびモデルとの対応を向上させる点でも有利となる。なお、この考え方は、スイス放射性廃棄物管理協同組合(Nagra)での Super-FEP の考え方(Nagra, 2002a, 2002b)と一部共通している。

ただし、第2次取りまとめで用いた FEP および安全機能は、上記方法を具体化するためには必ずしも十分ではない。たとえば、安全機能は必ずしもシステムの性能を網羅的に表現するものとはなっておらず、また FEP についても安全機能との詳細な対応づけは行われていな

い。そのため、上記手法を具体化するためには、第2次取りまとめで用いた FEP および安全機能を図 4.1.1-3（左図）に示すように上記手法に対応しやすい形に再整理（修正、追加、分割など）することが必要となる。その上で図 4.1.1-3（右図）の階層化を実施することが適切であると考ええる。

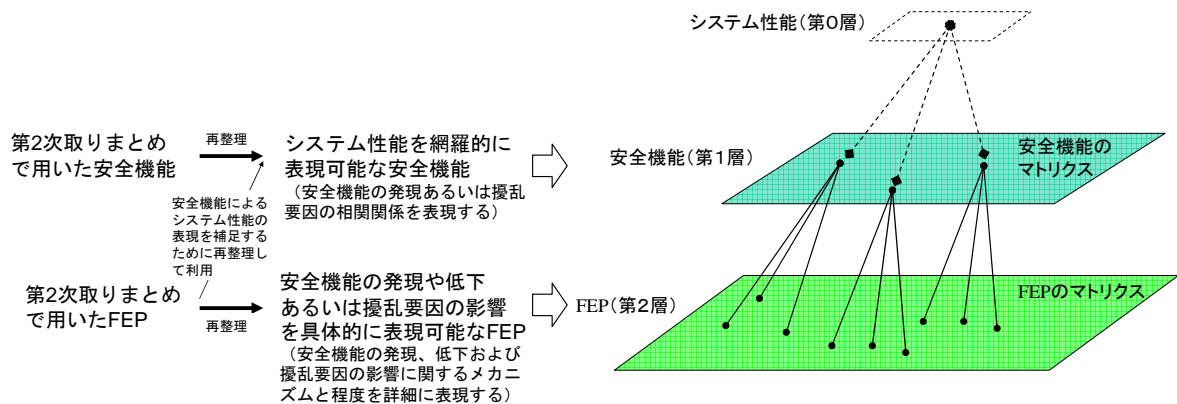


図 4.1.1-3 相関関係マトリクスの階層的な構造のイメージ

このような安全機能と FEP の再整理においては、たとえば FEP の相関関係を従来のように「地下水組成」→「収着」という抽象的な表現とするのではなく、特性 FEP やプロセス FEP のどのような状態が安全機能の発現や低下に関係するかを表す端的な修飾語をつけて、より具体的に「強還元」→「大きな収着」や「非強還元」→「小さな収着」といった表現を用いることが有効と考えられる。このような表現を導入することにより、安全機能の相関関係および FEP の相関関係のそれぞれの意味が具体的となり、安全機能と FEP の関係づけも容易になる。また、複数の環境条件を想定する必要がある場合に、それぞれの環境条件に応じた特性 FEP やプロセス FEP の異なる状態を区別して設定し（たとえば、上記の強還元、非強還元、大きな収着、小さな収着などを相関関係マトリクスの要素とする）、それぞれの状態について整理される相関関係をひとつの相関関係マトリクス上に集約することができる。

(iii) 相関関係マトリクスと階層化に基づく手法の具体化

(ii)で述べた FEP の取扱い向上のための手法の概念により、(i)で述べたポイント①～③に関する向上を図ることができると考える。ここでは、これら概念を具体化するために実施した本手法の計算機ツールへの展開について述べたうえで、その適用例を示す。ただし、安全機能と FEP の再整理に関する検討を現在も継続して実施中であることから、適用性に関する検討は途中段階であり、相関関係マトリクスも最終的なものではなく一例である。

(a) 計算機ツールへの展開

(ii)で述べた相関関係マトリクスと階層化の概念の導入により、整理作業の結果としての相関関係の表現のみならず、相関関係を同定する作業なども定型的で構造化されたものとして行うことができる。この特徴は計算機上に展開するうえで有利であり、また計算機上に展開することによりこの特徴をより活かすことができるようになると考えられる。本検討では、相関関係の同定作業に共通的なインターフェイス（たとえば、マトリクス上での要素の指定による相関関係の同定、指定された要素に対する定型の手順・フォーマットによる情報の入力、FEP と安全機能のそれぞれのレベルでの作業の対応づけ）を提供することにより作業を効率的に実施しかつ記録できるようにするとともに、作業の内容や専門家の判断などを含む種々の補足情報を要素と関連づけて集約的に記録し管理することのできる計算機ツールを開発した。

また、相関関係マトリクスにより構造的に整理された相関関係を計算機上に展開するとともに各要素に種々の補足情報を付与することにより、その情報に基づき相関関係をスクリーニングすることが可能となる。本計算機ツールでは、以下の情報項目と情報の内容に基づきスクリーニングを行う機能を実現した。

- ・ 重要性（程度を整数で指定）
- ・ 生起可能性（程度を整数で指定）
- ・ 発生時期（緩衝材冠水時、緩衝材冠水後、オーバーパック破損後などより選択）
- ・ 発生領域（ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材、坑道、母岩などより選択）
- ・ 現象種類（熱、水理、力学、化学、放射線、核種移行より選択）
- ・ 解析モデル（ガラス溶解、地下水流動、核種移行などより選択）
- ・ 不確実性（有無、程度などを指定）
- ・ コメント（上記以外の情報をテキストで記入）

これら補足情報を相関関係マトリクス作成時に設定し、スクリーニングで着目する情報項目とスクリーニングの基準とする情報の内容を指定することで、該当する要素を抽出することができる。たとえば、生起可能性の高い要素のスクリーニング、オーバーパック破損前の再冠水時に発生する要素のスクリーニング、特定のモデルに関係する要素のスクリーニング、さらには複数の情報項目を組み合わせたスクリーニングなどが実施できる。このような種々の着眼点でスクリーニングを実施することにより、より詳細なシナリオの分析が可能になる。

さらに、相関関係マトリクスの特定の要素を、始点あるいは終点として指定し、始点からの影響の伝播ルートあるいは終点への影響の伝播ルートなどを相関関係の情報に基づいて抽出する機能を付加している。この機能により、特定の要素に関する影響の伝播を詳細に分析することができる。

(b) 手法の適用例

人工バリア領域を対象として、(ii)で示した手法および前項(a)で開発した計算機ツールの適用性の検討を行った。結果の例を図 4.1.1-4 に示す。図 4.1.1-4(a)が安全機能層の整理の例、図 4.1.1-4(b)が安全機能間の相関関係を FEP を用いて詳細に表現した FEP 層の例である。また、開発した計算機ツールが有する相関関係マトリクスの内容を簡易的な PID として表現する機能を用いた例を図 4.1.1-4(c)に示す。

上記試行を通じて、相関関係マトリクスと階層化の概念およびその計算機ツールへの展開により、本手法が従来の FEP の処理に比べて、特に、

- ・ 作業が構造化され容易になる、また作業の経緯と内容が明確になる
- ・ マトリクス形式とすること、および安全機能側と FEP 側の両方から相関関係マトリクスを確認することにより、相関関係の見落としの発見が容易になる

という点で FEP の取扱いの向上に有効であるとの見通しを得た。

しかしながら、最終的な相関関係マトリクスを一度の作業で完成することは困難であり、今後とも本手法を用いた具体的な作業を繰り返し行うことを通じて、相関関係マトリクスの構造の最適化、および安全機能と FEP の表現の再整理などを進める必要がある。

なお、図 4.1.1-4 の例では、安全機能の発現に関する相関関係を中心とした検討としているが、擾乱要因の影響についても同様な考え方で相関関係マトリクスに要素を追加し他の要素との相関関係を整理することで対応できる。

(a) 安全機能層の例
(人工バリア)

相関関係マトリクス

ウィンドウ(W) 編集(E) 表示(V) 機能(F) 連鎖(C)

FEP連鎖:入力側 好ましい/間隙水組成 連鎖探索起点 なし

→アクティブセルのFEP 小さな拡散, 大きな取着, 溶解度制限 連鎖探索終点 なし

→FEP連鎖:出力側 緩衝材中での小さな核種移行速度 親FEP root

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1	小さな地下水流速										規制影響領域での小さな地下水流速
2		好ましい地下水組成	地下水浸入・反応								
3			膨潤	緩衝材による化学的緩衝							
4			緩衝材の低透水性	間隙水浸入抑制	間隙水接触抑制						拡散支配の移行, コロイド等の通過
5				好ましい間隙水組成	間隙水浸入・反応	間隙水浸入・反応				小さな拡散, 大きな取着, 溶解度制限	
6				腐食生成物との反応	所期のOP特性	ゆっくりした腐食					
7					OPの核種閉じ込め	発熱量の減衰(地温に近い温度への低下)					
8						所期のガラス固化体特性	核種の減衰				
9							小さな拡散, 大きな取着, 溶解度制限(小さな溶解度)				
10							ガラス溶解・核種溶出抑制				
11							固化体からの小さな核種溶出速度			緩衝材中の小さな核種移行速度	拡散支配の移行, 核種の減衰

完了

(b) FEP 層の例
(上記(a)の赤枠の要素間の相関関係のFEPによる詳細表現の例)

サブマトリクス: 全体

ウィンドウ(W) 編集(E) 表示(V) 機能(F) 連鎖(C)

FEP連鎖:入力側 連鎖探索起点 なし

→アクティブセルのFEP 小さな拡散, 大きな取着, 溶解度制限(小さな溶解度) 連鎖探索終点 なし

→FEP連鎖:出力側 小さな地下水流速 親FEP 小さな地下水流速

	2	3	4	6	7	8	13	14
2	中性～弱アルカリのpH, 強還元性	地下水浸入・反応	地下水浸入・反応					
3		緩衝材の鉱物組成	膨潤	方解石溶解・沈殿, 黄鉄鉱溶解・沈殿, イオン交換	実質, コンクリートとの反応等			
4			緩衝材の膨潤特性					
6				中性～弱アルカリのpH, 強還元性			小さな拡散, 大きな取着, 溶解度制限(小さな溶解度)	
7				中性～弱アルカリ以外のpH			小さな取着, 大きな溶解度等	
8					非強還元		小さな取着, 大きな溶解度等	
13							小さな核種移行速度	
14								大きな核種移行速度

完了

(c) 安全機能間の相関関係の簡易PID表現の例

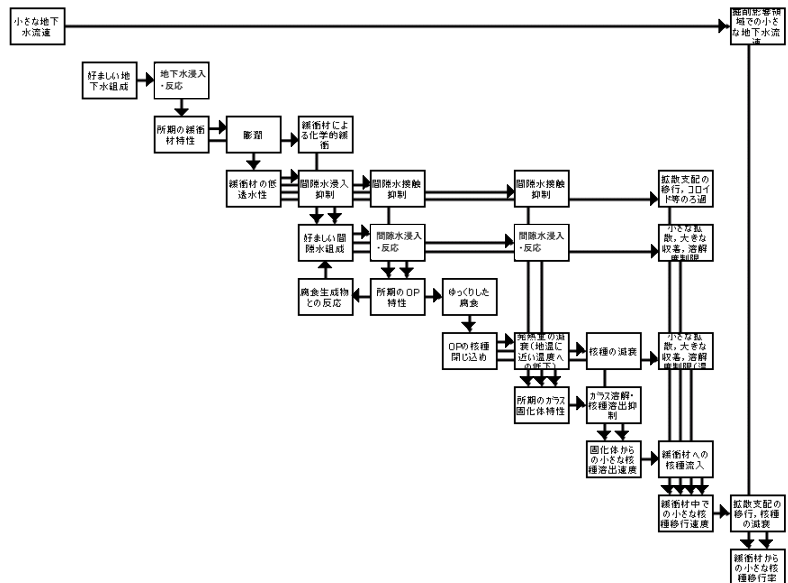


図 4.1.1-4 相関関係マトリクスと階層化による相関関係の整理の例

(3) 結論

シナリオ解析において重要であり、複雑で時間を要する作業である FEP の相関関係の整理に対して、マトリクス形式での整理と階層化により相関関係を構造化して表現する手法を考案した。以下、この手法の特徴を(2)(i)で示した技術開発のポイントと対比させて整理する。

- ・①の FEP の相関関係の整理・表現については、相関関係をマトリクス形式で整理することの利点と階層化の利点を組み合わせることにより、必要に応じて安全機能というシステム性能により近いレベルで全体像を鳥瞰する、あるいは安全機能を入り口として下位の FEP のレベルまで詳しく見ていくなど、作業の目的に応じた柔軟な利用が可能になる。相関関係の見落としの可能性を小さくシナリオの合理的な十分性を確保する上では、マトリクス形式での整理を行うこととあわせて、このような複数の視点を持ってシナリオ解析を行うことは有効である。また、相関関係の整理に拘わる作業を計算機ツールを用いて行えるようにしたことで、作業の効率化が図れる。
- ・②のモデル作成や解析ケースの設定との対応については、複雑な FEP の相関関係をいきなりシナリオやモデルと対応させるのではなく、FEP をシナリオやモデルの要素と対応しやすい安全機能と関係づけながら構造的なまとまりとして整理すること、および相関関係の整理の段階でモデルとの関係を補足情報として与えることによりモデルごとのスクリーニングを可能としていることなどにより、相関関係の整理の段階で適切な準備を行うことができるようになった。
- ・③の作業のプロセスや内容および判断の記録については、マトリクス化という考え方および計算機ツールの導入により、相関関係の同定作業やスクリーニング作業の手順が明確になるとともに、作業の内容および判断などに関する情報を相関関係マトリクスの各要素と関連づけて一元的に集約・管理することができるようになった。また、作業が見通しやすくなり、評価に何が含まれているかも把握しやすくなることから、シナリオに関する関係者との議論がしやすくなると期待される。これにより、FEP の取扱いに関する作業の追跡性と透明性を従来よりも向上させることができる。

以上のことから、FEP の相関関係を構造化して表現する手法を構築し、さらにこの手法を計算機ツール上に展開することにより、相関関係の十分性の確保、作業の効率化、および作業のプロセス・内容・判断の記録の集約などの観点から FEP の取扱い技術を向上させた。また、本検討を通じて、FEP や安全機能が有する複雑な相関関係を構造化して取扱うことが、相関関係の表現のみならず作業の実施面においても有効であることを確認した。

(4) 今後の課題

本検討で構築した手法や計算機ツールを大規模なシナリオ解析および実際の地質環境を対象としたシナリオ解析に効率的・効果的に適用していくための検討と環境整備を行っていく。

- ・安全評価で対象とするすべての安全機能と FEP を含んだ相関関係の整理およびその結果のモデル・解析ケースとの対応づけに対する本手法の適用性の確認。そのために必要となる相関関係マトリクスの最適化や安全機能と FEP の再整理の実施。また、本手法を用いて実際の地質環境を対象としたシナリオ解析を行うための課題や留意点の抽出。
- ・複数の視点で行ったスクリーニング結果の相互比較機能あるいは相関関係マトリクスの履歴管理機能の追加などの計算機ツールの機能の高度化。
- ・上記検討を通じた本手法の適用事例の蓄積・拡充、および本手法の適用に関するノウハウや適用限界などの明確化。

なお、上記取組みについては、当面はわが国での幅広い地質環境の特徴および各種現象の特徴などに関する情報、ならびに利用可能な深地層の研究施設計画の成果などを用いた検討を中心とするが、概要調査地区などにおける実際の地質環境の情報が利用できる場合には、その特徴に対応するための検討にも拡大していきたいと考えている。

4.1.2 天然現象影響評価技術の高度化

(1) はじめに

第2次取りまとめでは、文献調査や事例研究などを通じて地層処分に影響を及ぼす可能性のある天然現象（地震・断層活動、火山・火成活動、隆起・沈降・侵食、気候・海水準変動）の地域性、変動速度や地質環境に及ぼす影響の範囲・程度などについて取りまとめるとともに、「天然現象の著しい影響が及ばない安定な地質環境がわが国にも存在する」ことを科学的根拠に基づき示した。

事業における「高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域（以下、「概要調査地区」という）」（原子力発電環境整備機構，2002a）の選定については、考慮事項（「法定要件に関する事項」および「付加的に評価する事項」）において、「文献調査で分かる範囲で最終処分施設建設地としての適性が明らかに劣る地域を含まないように選定」することとしている（原子力発電環境整備機構，2002b）。また、「文献調査から明確に判断できない場合には、概要調査あるいはそれ以降の調査において、最終処分施設を合理的に配置することが困難となるような現象の有無を検討していく」（原子力発電環境整備機構，2002b）としており、事業は天然現象によってシステム性能が重大な影響を被る可能性のある地域をあらかじめ排除したうえで進められる。

このようなことから、数万年を超えるような超長期においても、処分場近傍に天然現象が発生し重大な影響を及ぼす可能性は極めて小さいと考えられる。しかしながら、従来の天然現象の影響評価は、保守性を重視して検討したため、現象が処分場を直撃、あるいは直撃はしないまでも処分システムに大きな影響を及ぼす場合に注目することが多かった。一方、処分場からやや離れた所に天然現象が発生しそれほど重大ではない影響を及ぼす可能性は相対的には大きくなるため、今後はその際の処分システムへの影響の程度を評価できるようにしておく必要がある。

第2次取りまとめにおける天然現象影響評価では、簡便で保守的なシナリオの検討および影響評価を例示的に行った（牧野ほか，2000）。その手法は、天然現象の発生をあえて想定して、それにより処分システムが被る特徴的な影響に焦点をあて、その影響をイベント・ツリーによりケース分けし、それらを簡略的かつ保守的なシナリオやモデルとして表現し、評価するというものであった。その結果、国の評価では「10万年を超える長期にわたる安全評価の手法、安全確保の在り方について、一つの考え方が提示されたものと判断できる」（原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会，2000）とされており、場所を特定しない幅広い地質環境を対象とした調査研究段階の取組みとして一定の評価を受けた。

一方、高レベル放射性廃棄物処分の事業の進展に伴い、事業の実施主体や安全規制側から各種の報告書が出されている（たとえば、原子力発電環境整備機構，2004；原子力安全委員会，2002；原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会，2000；総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会，2003；原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会，2004；山元・小玉，2004；日本原子力研究所，2004）。事業の実施主体・安全規制側ともに、報告書の中に評価シナリオ構築の一部として天然現象に関する影響評価の必要性に関する記述が見られる。それらのニーズを集約すると「最新の事例研究の成果を取り込んだ科学的な知見に基づき、設計・施工での対応や処分システム全体の安全性能との関連も考慮し、過度な保守性を排した適切な天然現象影響評価ができる技術の開発」、換言すれば「天然現象および場の特徴を適切に取り込みつつ、なるべく現実的な評価が行えるようすること」が求められている。

諸外国においても、天然現象影響評価の検討の際にはその国の地域特性を十分に検討しつつ評価対象とする天然現象の選択および決定論あるいは確率論などの取扱い方法を検討しており、場の特徴を適切に取り込みつつ、なるべくその国の実情に適した現実的な評価が行えるようにすることを目的としている（たとえば、ONDRAF/NIRAS，2001a，2001b；Marivoet，

1994 ; AECL, 1994 ; Vieno and Nordman, 1999 ; SKB, 1999 ; Nagra, 1994 ; CRWMS, 2000 ; US DOE, 2001a)。

以上のことから、地層処分システムの安全性を論ずるうえで検討しておくべき外的な擾乱要因のひとつとして、天然現象による影響を、その強弱の多様性、さらには地域性との関係なども含めながら幅広く検討・整理しておくこと、あるいは評価できるようにしておくことは重要と考える。また、場合によっては発生頻度がきわめて低いと考えられる起こりそうにない仮想的なシナリオをあえて想定し安全評価を行っておくこと、あるいは行えるようにしておくことは、地層処分の技術的信頼性の向上および安全性に対する社会の理解の向上による社会のコンセンサスの醸成を図っていくうえで有効と考えられる。

事業段階においてこのような評価を進めるにあたっては、概要調査などによって得られた科学的知見やデータなどにに基づき、サイトの条件に応じて考慮すべき現象やシナリオの記述が行われるものと想定されるが、サイトを特定されていない現段階では、サイトに特化した天然現象影響評価のためのシナリオの検討は困難である。一方、天然現象を考慮した評価を行うに際しては、評価結果が過度に保守的にならないよう、現実性に留意したシナリオによって検討を進めていくことも重要である。これらのことから、サイトが特定されていない現段階での研究開発の進め方としては、わが国において想定され得る天然現象の発生やそれに伴う地質環境条件への影響などを実際の現象を対象とした調査、観測および解析などに関する国内での既存の事例研究の情報に基づき整理するとともに、それらの情報に基づき天然現象を考慮した安全評価を行うための考え方や評価方法を予め検討しておくことが有効である。

以上より、全体目標として、わが国で起こり得る天然現象やそれに起因する地質環境条件の変化などの事例研究の情報に基づき、保守性よりも現実性を重視した天然現象影響評価のための一連の作業手順と作業内容をまとめた作業フレームを構築すること、および最終的にはどのような場の特徴に対して、どのような天然現象影響評価を考えるべきかが提示できるように包括的な整理を目指すことを本研究の目標とした。

(2) 研究内容

(i) 作業フレームの具体化

本研究では(1)で示した全体目標のうち、保守性よりも現実性を重視した天然現象影響評価を実施するために、実際に起こり得る現実的な現象を出発点とし、影響解析に至るまでの作業フレームを以下の点に留意して構築することとした。

構築する作業フレームは、

- ・ 現実性を重視しつつ天然現象の実際の特徴に基づく複数のシナリオを設定可能
- ・ 複数のシナリオとしては、それらの違いがわかりやすく（たとえば第2次取りまとめのような保守的な観点で設定したシナリオが他のシナリオに比して具体的にどの程度保守的なのかを検証可能）かつ合理的な数を設定可能
- ・ また、各シナリオについては現実的な範囲内において保守的な想定に基づくシナリオを設定可能

となるように留意した。また、作業フレームを用いて構築されるシナリオは、

- ・ 透明性：検討に取り込んだ天然現象のプロセスやそれに起因する地質環境条件の変化の適切な記述とその際の出典、根拠の明確化
- ・ 追跡性：一連の作業の内容の明確化、記録化
- ・ 整合性：一連の作業における情報の受け渡しの適切性が確保されることにも配慮した。

上記の点に留意して構築した作業フレームにより、過度に保守的とならずに、また地球科学の専門家の合意が得られるレベルの現実性を有するシナリオに基づいた評価が行えるよう

にする。そのうえで、サイトへの適用も考慮しながら天然現象の影響評価事例を蓄積し、最終的には包括的なリスト化へと展開させていく。

(a) 作業手順の検討

まず事例研究を出発点として天然現象の発生から処分環境・システム性能への影響を具体化し整理する作業手順について検討した。おおよその作業としては、

- ① どのような様式、規模などの天然現象が発生し得るかを検討する
- ② それに伴いどのような地質環境条件の変化（温度、地下水流動の変化、岩盤物性、地下水質の変化など）が想定されるかを検討する
- ③ それらの発生様式と影響様式の組み合わせに対して、処分環境・システム性能への影響を想定し、モデル化・影響評価を実施する

という流れが考えられる。

ここで、作業手順を検討する際に考慮した特徴のひとつは、①および②の作業を行う際に、事例研究から情報を抽出しやすいように、

- ・まず天然現象による地質環境条件の変化の多様性を考えたうえで（図 4.1.2-1(a)）、それらの影響の程度の違いが生ずる領域（以下、「影響領域」という）を設定する（図 4.1.2-1(b)）。そのうえで、それら影響領域に処分場が存在することを仮定することにより処分環境・システム性能への影響を考える（図 4.1.2-1(b)）

としたことである。これは、保守性重視の観点から地層処分システムが被る特徴的で大きな影響のみに焦点をあてた第 2 次取りまとめとは異なる方法である。この方法により以下のような効果が期待できる。

- ・天然現象の発生と地質環境条件の変化を想定する際に、客観的な事実として既存の事例研究の成果の利用が容易となる。
- ・影響領域に対して、処分場を相対的に配置することにより、多様な地質環境条件の変化が処分環境・システム性能に及ぼす影響を過度な保守性に偏らずに合理的な数で複数想定することが可能となる。

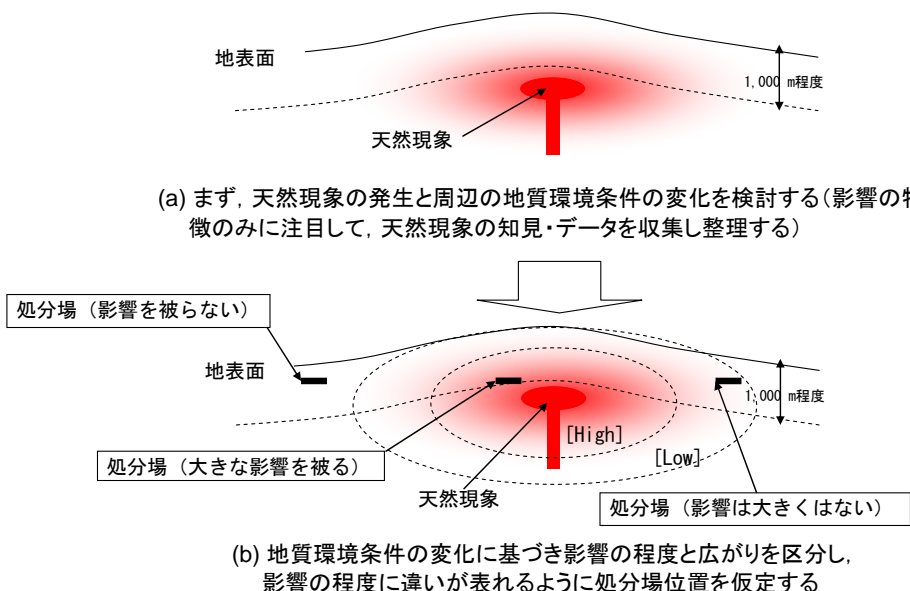


図 4.1.2-1 天然現象の発生から処分環境・システム性能への影響の整理作業イメージ（①から②までの作業イメージ）

次いで、②から③への作業については以下のような工夫をした。すなわち、現実には発生している現象およびその影響は多種多様であり、その発生は地域性などの条件とも関係する。

また、たとえば同一の火山であっても複数回の活動を比較すると異なる挙動を示す場合もあり得る。そのため、シナリオの現実性を向上させるためには、そのような情報について事例研究成果を網羅的に整理し、それらを組み合わせながらシナリオに取り込むことが必要とされる。しかしながら、それら組み合わせに対して逐一シナリオを構築しようとするのは、シナリオの数が膨大となるとともに、シナリオが複雑になりすぎるため現実的ではない。また、隆起による相対的な海面の低下と気候変動による海退のように、異なる天然現象が地質環境条件に類似した変化を与えると考えられる場合もある。そこで、②から③の作業を実施する際には、事例研究からの情報の組み合わせをそのままシナリオに反映させるのではなく、それらの情報を地質環境条件の変化の類似性などに基づきある程度パターン化（類型化）することとした。また、この時に、①から③への作業のつながりが曖昧にならないように、作業の経緯や判断などが追跡できるようにしておくことにも留意することとした。このように、現実の特徴を失わない程度に類型化し、シナリオをある程度単純化することは、シナリオの分かりやすさや影響評価上の取扱いやすさの観点から重要であると考えられる。

(b) 作業フレームの構築

ここで、(a)に述べた点を考慮したうえで、①～③の作業内容を細分化し、それらの作業順序と各段階における作業内容およびアウトプットを定めることで作業フレームとして具体化した（川村ほか、2005）。

まず、天然現象の発生様式（形式、規模）の抽出・整理から影響評価までの作業を図 4.1.2-2 に示す 5 つのステップに細分化した。図 4.1.2-2 の Step1～5 と(a)で述べた①～③の作業手順の対応については、Step1 が①、Step2 が②、Step3～5 が③に相当する。

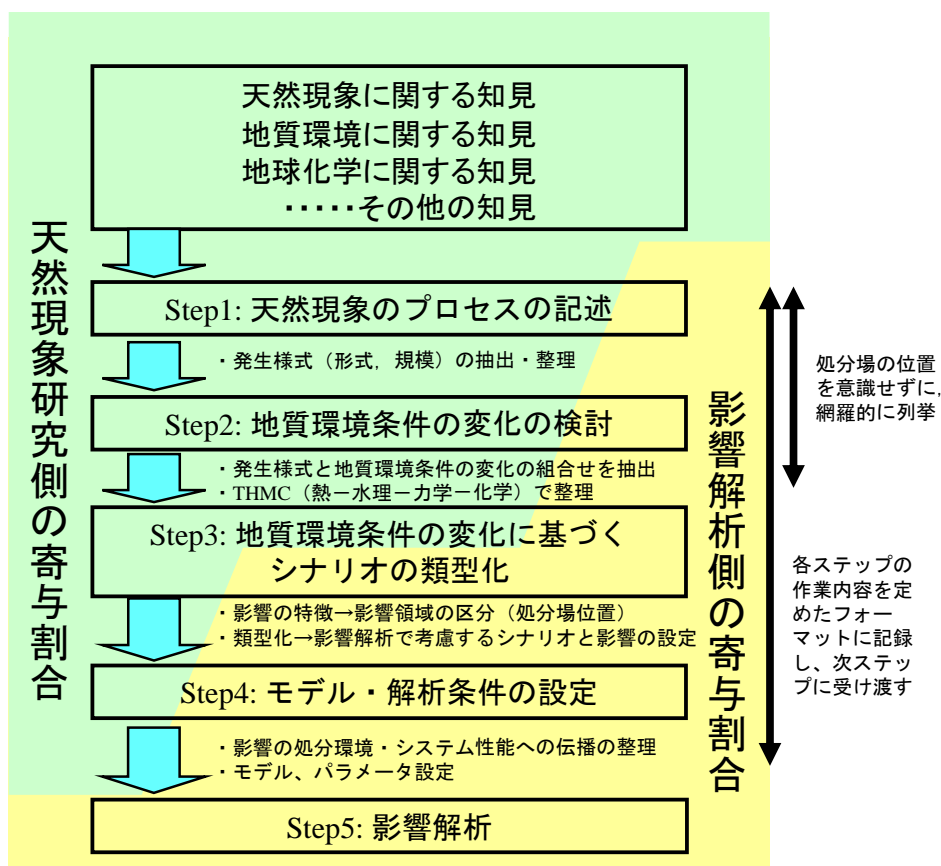


図 4.1.2-2 天然現象影響評価の作業手順

本作業フレーム全体の特徴を整理する。まず、本作業フレームでは、図 4.1.2-2 に示すよう

に、各ステップの作業において天然現象の専門家と影響解析の専門家がそれぞれの専門分野で中心的に機能するとともに、全体にわたって協働するようにしている。特に地質環境条件の変化に基づくシナリオの類型化では両者が協働することを特に重視している。

また、作業の透明性・追跡性・整合性の確保のために、各ステップの作業の結果は、定型のフォーマットに逐次記録していく。つまり各ステップにおいて逐次結果を整理・記録していき、その成果を引用・参照して次のステップに進むということになる。このことにより各ステップをある程度独立したものとすることが可能となる（モジュール化）。

このような作業フレームに沿って一連の作業を進めることにより、天然現象の専門家と影響解析の専門家のそれぞれが有する情報や技術を活かすとともに、相互に合意しながら天然現象の影響に関する検討を段階的かつ体系的に進めていくことができる。また、モジュール化することにより、ステップごとにその作業方法の改良などが容易になる。

このような観点で検討された作業フレームは、今後の実際のサイトを対象とした天然現象の影響評価作業への適用に対する柔軟性も有するものと考えられる。

(ii) 作業内容の詳細

以下、火山活動を例として、図 4.1.2-2 で示した作業フレームでの各ステップの作業内容の詳細について説明する（川村ほか，2005）。

(a) Step1：天然現象のプロセスの記述

事例研究成果や一般的な科学的知見に基づき、火山活動について現象の発生から地質環境条件が変化するまでの一連のプロセス（以下、「天然現象のプロセス」という）について記述する。

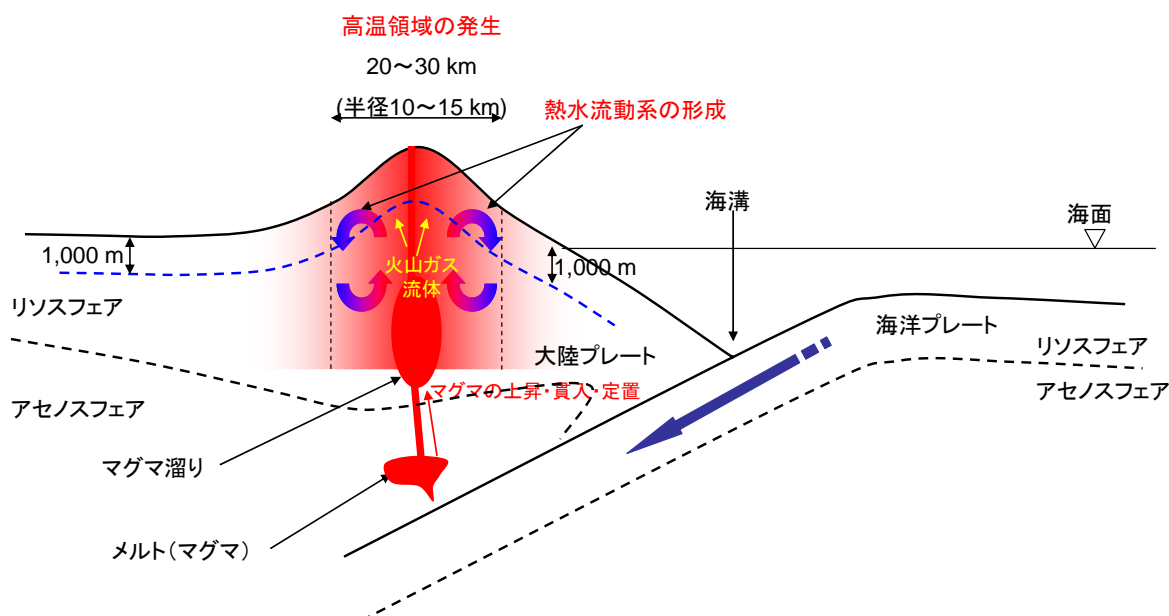


図 4.1.2-3 Step1 での天然現象のプロセスに関する知見・情報の収集・整理の作業例（火山活動の例）

図 4.1.2-3 に示すように、まずプレート運動に起因しプレート境界付近のアセノスフェアでメルト（マグマ）が発生する。溶融した状態のメルト（マグマ）は比重が周辺岩石よりも小さいため、浮力により地下深部から上昇し、ある程度の深度に貫入・定置し、マグマ溜まりを形成するという現象が考えられる。その現象は地質環境条件を変化させる原因である高温領域の発生、熱水流動系の形成、また多くの場合酸性の火山ガスや流体の発生を伴う。「Step1：天然現象のプロセスの記述」ではここまでの記述を行うこととする。具体的には、

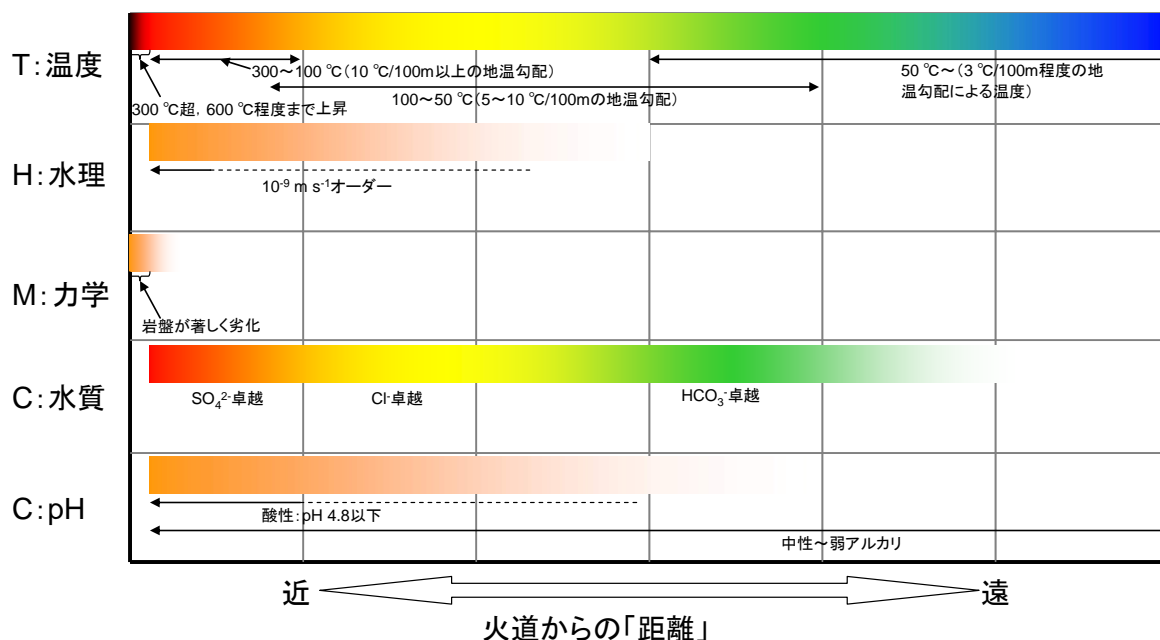
「①マグマ」が、「②地下に貫入・定置」し、「③熱エネルギーを発生」する、などの定型化した記入形式により列挙する。この場合、単純には[①の個数]×[②の個数]×[③の個数]の個数の組み合わせの天然現象のプロセスが列挙される。なお、この段階で明らかに学術的に不合理な組み合わせは排除する。

(b) Step2 : 地質環境条件 (THMC : 熱-水理-力学-化学) の変化の検討

ここでは、天然現象に起因して、どのような地質環境条件の変化が発生し、それがどの程度の多様性を有するかを既存の文献情報から網羅的に列挙することを目的とする。すなわち Step1 で列挙した「高温領域の発生」、「熱水流動系の形成」、「酸性流体の発生」に起因する「地温勾配の変化」、「地下水流動の変化」、「地下水水質の変化」などの地質環境条件の変化を整理する。その際、物質移行解析に必要な熱(T)、水理(H)、化学(C)、処分坑道の安定性解析などに必要な力学(M)の知見・データをもれなく収集するために、THMC のフォーマットで整理する。具体的には以下の内容について、図 4.1.2-4 のような情報の整理なども行いながら知見・データの収集・整理の作業を行う。

- ・ T (熱) : 周辺温度 (地温勾配, 温度の変化など)
- ・ H (水理) : 地下水流動 (透水係数, 流動方向, 流速の変化など)
- ・ M (力学) : 岩盤物性 (各種岩盤物性の変化など)
- ・ C (化学) : 地下水水質 (pH, 酸化還元状態, 溶存成分の変化など), 岩盤を構成する岩石の鉱物組成の変化, 水-岩石反応速度の変化など

たとえば火山活動においても火道からの距離や地質構造の違いによって湧出する温泉水の温度, 流量, 水質などが異なる場合も多く認められる。図 4.1.2-4 の例では, C の地下水の pH が, 火道の近傍でも必ずしも酸性になる場合ばかりではなく, 中性~弱アルカリ性の場合もあることを示している。よって, ひとつの「天然現象のプロセス」に対して多様な「地質環境条件の変化」を記述する。



留意点: 変化については, その距離における最大値を表示。但し, 例外的なデータも多いことに留意。

図 4.1.2-4 Step2 での地質環境条件の変化に関する知見・データの収集・整理の作業例 (火山活動の例)

(i)に既述したように, 事例研究の知見を処分場との位置関係に拘らず整理することにより,

Step1 および Step2 において、客観的な事実としての既存の研究事例の成果あるいは天然現象研究の知見が引き出しやすくなる。また、従来は保守性を重視するあまり、起こりにくいが影響が大きくなる可能性のある処分場直撃や、直撃はしないまでも大きな影響を与える場合に着目することが多かったが、本ステップにより、影響を被る可能性が相対的に高くなると予想される距離的により遠方で生ずるそれほど重大ではない影響（＝弱影響）についての知見・データの収集が可能となり、シナリオ設定や影響解析の対象範囲を広くすることができる。

また、これらの情報を定型のフォーマット（表 4.1.2-1）に記載し Step2 のアウトプットとする。この例では、Step1 の作業として、「1. 新規火成活動」の発生に対して「2. マグマが貫入・定置し熱エネルギーが発生」を考え、さらに「3. 流体・火山ガスの放出」として「I. 酸性流体・火山ガスが放出」される場合と「II. 放出される流体に酸性ガスや酸性流体を多く伴わない」場合のふたつのケースを想定している。Step2 の作業では 3. のケース I に対応する地質環境条件の変化としてケース No. I - ①～④の 4 ケース、ケース II に対応する地質環境条件の変化としてケース No. II - ①～③の 3 ケースの合計 7 ケースのシナリオを想定し、それぞれについて、THMC 形式で地質環境条件の変化の様式を記述している。

このような情報の整理が天然現象の専門家により行われることから、既存の事例研究の成果との整合性を確保しながら天然現象影響評価に必要な知見・データを準備することができ、また、情報が埋められないところは調査・研究が進められていない部分として、天然現象研究側への研究課題の提案としてフィードバックすることが可能となる。

この段階においては、可能な限り網羅性を重視するものとする。たとえば、比較的遠方の現象でその影響が微弱あるいは一時的であり、万年オーダーの長期的な評価の観点からは無視できるレベルと考えられても、地下の環境への影響が観測されるような現象、たとえば釜石原位置試験で得られた地震による地下水圧変化の観測事例（核燃料サイクル開発機構，1999；佐々木ほか，1999）や、2004 年 12 月 26 日 9:58（日本時間）に発生したスマトラ沖地震によって震源から約 5,600 km 離れたわが国においても地下水位の変化があったような現象（独立行政法人産業技術総合研究所ほか，2005）についても、可能な限り情報を整理しておくこととする。

さらに、天然現象の発生については地域性が認められるものが多い。そのため、たとえば火山フロントよりも海溝側の地域における火山活動の開始を想定すること、あるいは過去の氷河期においても形成された証拠が見いだされていない永久凍土の発生を想定するような地域性などを考慮しないシナリオを考えることは、混乱を招くこととなり、地球科学的な見地からは、むしろ現実性を損なうことから、適切なものとはいえない。そのため、天然現象が発生する条件や可能性、さらには地質環境条件が変化する条件や可能性などの情報も留意事項として記述する。具体的には、整理した火山活動の現象が発生しやすい（しにくい）条件、あるいはその現象によって発生した熱や酸性流体に起因して地質環境条件の変化が生じかつ伝搬しやすい（しにくい）条件などについての情報を記述する。このために、表 4.1.2-1 のフォーマットでは、Step1 の右側に現象の発生条件、さらに Step2 の右側に影響の発生条件と列挙したシナリオ間の相対的な影響の発生可能性の情報を記述する欄を設けている。

(c) Step3 : 地質環境条件の変化に基づくシナリオの類型化

ここではまず、「Step1 : 天然現象のプロセスの記述」と「Step2 : 地質環境条件の変化の検討」で記述・整理された情報に基づき、(i)の(a)で述べた、「類型化」を実施する。類型化の目的は、Step2 において網羅的に列挙された多数の地質環境条件の変化の記述を比較・検討し、影響の観点から類似したものを整理するとともに、影響解析に受け渡すシナリオの数を合理化することである。

Step2 において網羅的に列挙された情報整理の方法のひとつとして「影響領域」を設定したうえで整理を行うことを試みた。ここで、地質環境条件の変化の程度は一般的には現象から離れるに従って減衰していくと考えられる（たとえば、図 4.1.2-4）。しかしながら、現象からの距離と地質環境条件の変化の程度については、図 4.1.2-5 に模式的に示すように、THMC で整理された温度、水理、岩盤物性、地下水の化学組成などの影響項目によって減衰パターンが異なるものと考えられる。そのため、影響領域の設定においては、Step2 で列挙した情報を検討し、まず、どの影響項目が対象とする現象により生ずる変化を特徴づけるか、また影響解析結果に効くかを検討し着目すべき影響項目を定める。そして、その影響項目に基づき影響の程度を複数の段階に区分して影響領域を設定する。ただし、幅広い地質環境を対象とした検討段階においては、変化の程度と影響領域の区分を厳密な意味で定量的に表現することは困難であり、現段階では特に必要ないと考えられる。そのため、影響領域の影響の程度を Very High, High, Low, Very Low などとして区分し、それらに対応する影響領域の大きさについては数 km～十数 km、あるいは、たとえば現象のサイズなどを基準とした場合の数倍、十数倍などの定性的なあるいは半定量的表現で区分する。

図 4.1.2-5 の例では、影響項目 1 は、現象からの距離がある程度のところまでは急激に低下するがその後の変化幅が小さいパターン、影響項目 2 は、その逆にある程度までは変化幅が小さいもののその後は急激に低下するパターン、影響項目 3 は、距離とともに低下傾向は認められるものの全体的な変化幅が小さいパターン、影響項目 4 は、距離とともに階段状に低下するパターンを示している。影響領域の区分には影響項目 1, 2, 4 の何れかを基準とすることができるが、どの影響項目に注目するかについては、地質環境条件の変化の特徴を整理しやすいか、また影響解析結果に影響を及ぼすかどうかを判断して決定する。図 4.1.2-5 の例では、影響項目 4 に着目し、影響領域（High および Low）を区分している。次いで影響項目 4 によって設定された High および Low の各影響領域内における影響項目 1～4 の最大値、最小値、平均値やその他の知見などを抽出・整理し、影響解析パラメータの設定のためのデータや知見とする。

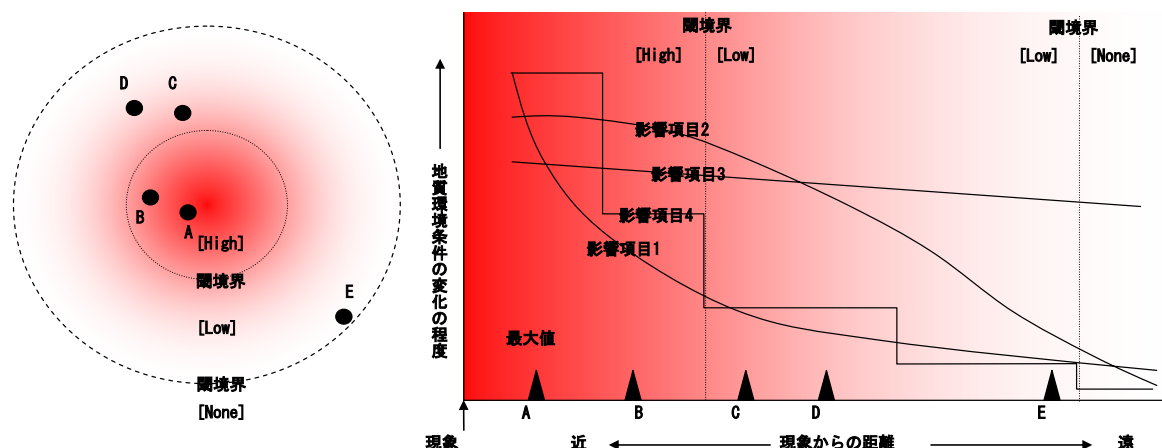


図 4.1.2-5 模式的な現象からの距離と地質環境条件の変化の程度との関係

上記の観点に基づき、表 4.1.2-1 の「I. 酸性の流体・火山ガスの放出」される場合について、THMC の影響項目のうち「C：化学」の特徴が区分しやすく影響解析結果に効くと判断して影響領域を区分した例を図 4.1.2-6 に示す。影響が Very High の領域は火道の極近傍の岩盤がマグマの貫入によって破碎され、かつ熱的な影響が非常に大きい領域である。さらにその外側を、着目した C の情報を用いて、

- ・影響 High：pH ≤ 4.8 あるいは水質として SO₄²⁻ が卓越する領域
- ・影響 Low：弱酸性～中性（pH ≥ 4.8）あるいは水質として HCO₃⁻ が卓越する領域として区分した。各影響領域内における残りの T, H, M が取り得る値は Step2 で収集・整理されたデータに基づき設定する。

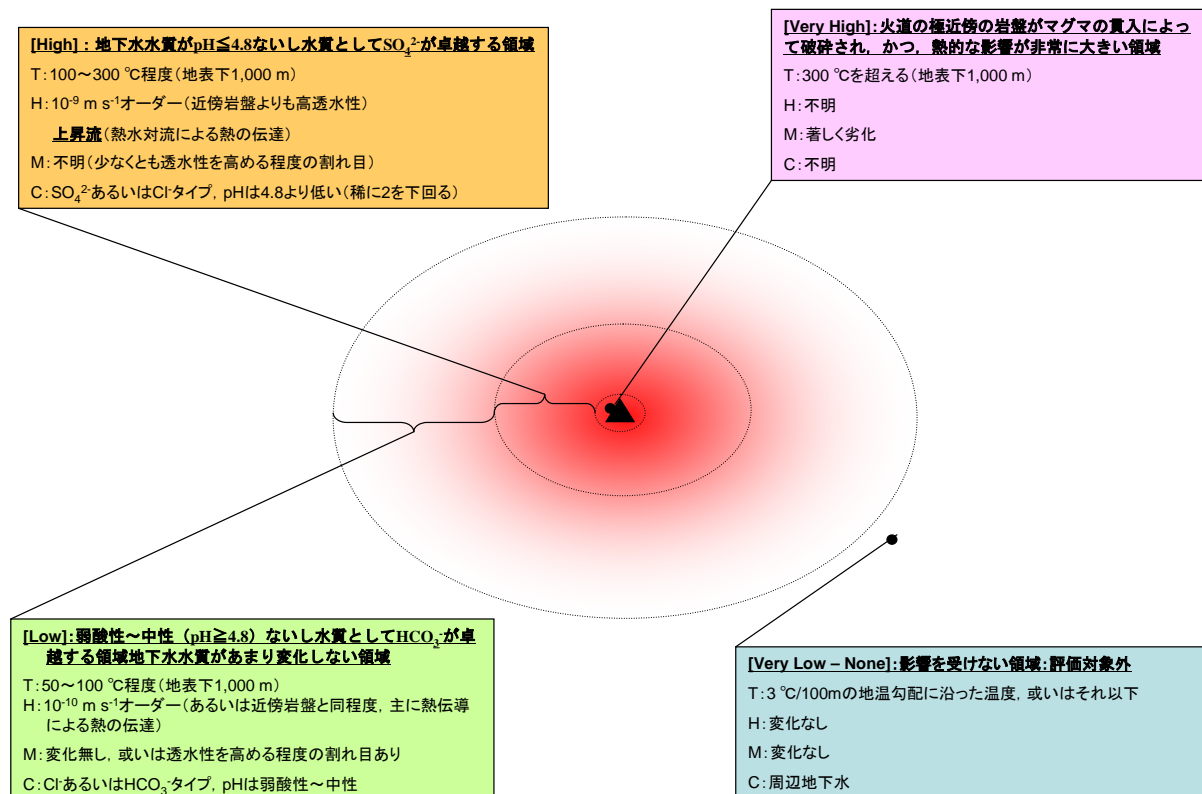


図 4.1.2-6 Step3 での地質環境条件の変化に基づく影響領域の区分のイメージ

また、同様の作業を表 4.1.2-1 中の「II. 放出される流体に酸性ガスや酸性流体を多く伴わない」場合についても行い、I とは異なる影響領域区分を設定し整理する。なお、Step2 の記述を整理するためには、発生する現象の規模や地質環境条件に応じて、ひとつの「天然現象のプロセス」に対して複数の影響領域を設定することが必要になる場合もある。

このように影響領域を設定した後に、各影響領域に処分場が存在することを仮定する。図 4.1.2-1(b)は、影響領域を high と Low のふたつに分け、それぞれに処分場が存在することを仮定した例を示している。それと同様に、図 4.1.2-6 において設定された Very High, High および Low の 3 つの領域それぞれに処分場の存在を仮定し、その処分場がそれぞれの影響領域での地質環境条件の変化にさらされるとする。

次に、影響領域の区分により整理した地質環境条件の変化に対して、(i)の(a)で述べたように、同様あるいは類似した影響であると判断できるものを分類し、シナリオの類型化を行う。表 4.1.2-1 においては、列挙されたシナリオのケース No. I-④と II-③に対しては同様な THMC の記述としており、両者を統合することは合理的である。また、C において、特に pH に着目した観点からは、T の違いこそあれ、地下水水質が酸性に変化するシナリオとしてケース No. I-②と I-③、しないシナリオとしてケース No. I-④、II-③および II-②を「類

似した影響」と判断することができると考えられる。そのような判断をした結果，類型化ケースとして，「A：火道，岩脈の近傍のケース」，「B：地下水水質が pH<4.8 になるケース」，「C：地下水水質があまり変化しないケース」に分類することができる。そのような作業の結果，Step2 で列挙されたシナリオ数 7 に対して，類型化ケースは A～C の 3 となった（図 4.1.2-7）。ここで，各類型化ケースが THMC の記述として幅を持つ場合には，代表的なものを記述する（表 4.1.2-1 の下段）。

以上のような作業により，複数のシナリオの違いを明らかにしながら設定することができるとともに，上記の代表的な記述として保守側の記述を選ぶことで，現実的な範囲で保守的な想定に基づくシナリオを設定することができる。

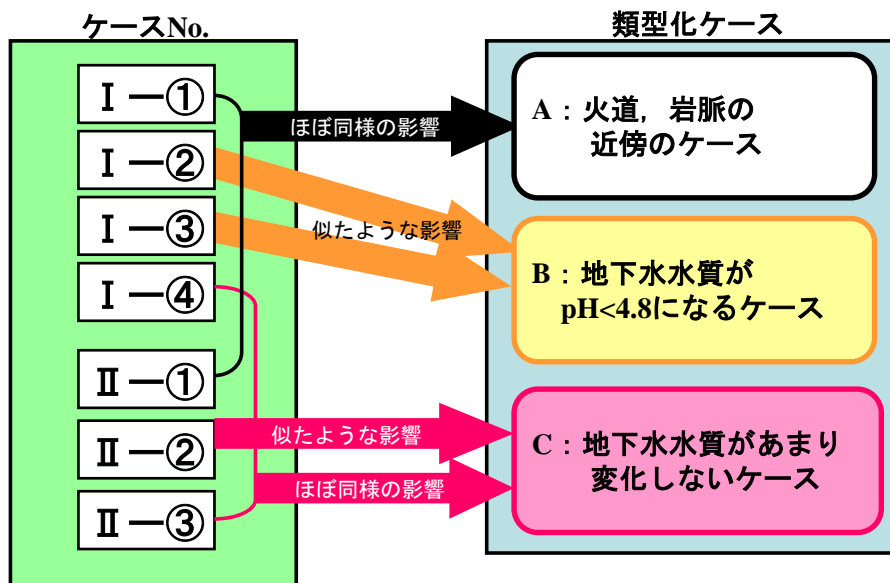


図 4.1.2-7 「類型化」への考え方の例
(ケース No.については，表 4.1.2-1 参照)

このような類型化の作業を，網羅的にかつ THMC という使いやすい形で整理した後に行うことにより，特徴的な影響を効果的に取り込んだパターン分類がしやすくなる。また，表 4.1.2-1 右下表の備考欄には類型化の際に着目した影響項目の取扱いなどについて記述し，類型化の際の考え方を記録するものとする。また，どの「Step1：天然現象のプロセス」のどの「Step2：地質環境条件の変化」がどの類型化ケースに分類されたかを明記し，追跡性を確保するものとする（表 4.1.2-1 右下表，「該当する Step2 のケース No.」欄参照）。

(d) Step4：モデル・解析条件の設定，Step5：影響解析

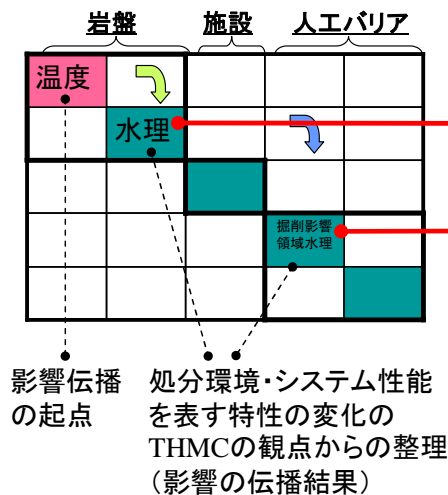
ここではまず，Step3 で設定した類型化ケースに対してモデル・解析条件の設定を実施する。本作業では，以下の内容を設定する。

- ・T（熱）：処分場温度（上昇／低下など）
- ・H（水理）：地下水流動（増加／減少など），移行経路（新規経路の発生／経路短縮など）
- ・M（力学）：バリア機能（劣化／喪失など）
- ・C（化学）：移行特性（溶解度，収着，分配係数の増加／減少など）

本作業については，RES（Rock Engineering System）法（Hudson, 1992）と呼ばれる，マトリクス形式を用いた方法を検討中である（図 4.1.2-8）。この方法の特徴は，類型化ケースで記述された地質環境条件の変化を起点として，周辺岩盤，施設領域，人工バリアという順番で影響解析で対象とする処分環境・システム性能への影響の伝播を整理するとともに，その影響の伝播と対応付けながら，人工バリア，施設領域，周辺岩盤の順で物質移行解析で

用いるモデルや解析条件を設定・変更することである。なお、この考え方や整理の構造は、将来的に、本項で述べた処分システム外部からの擾乱としての天然現象の影響に関するシナリオ解析と 4.1.1 項で述べた処分システム内部での挙動に関するシナリオ解析とを統合することを意識して、4.1.1 項で述べた相関関係マトリクスを用いた FEP の相関関係の整理の方法と共通性を有するものとした。

地質環境条件の変化の整理結果を起点とする
処分環境、システム性能への影響の伝播の整理



左図の影響の伝播結果(対角要素の状態)を受けた物質移行のモデル解析条件の設定・変更

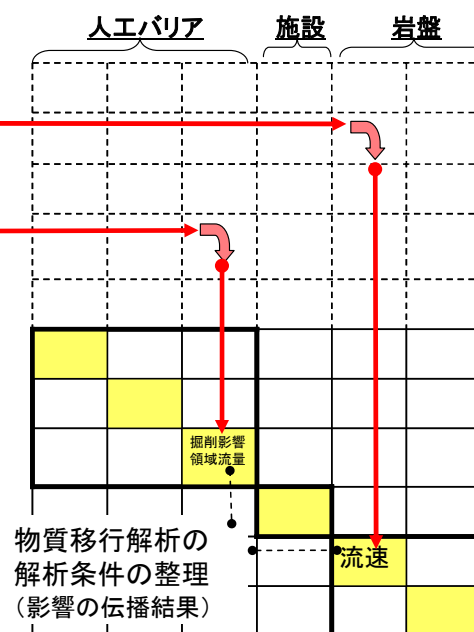


図 4.1.2-8 Step4 でのモデル・解析条件の設定作業のイメージ

図 4.1.2-8 の例では、岩盤の温度の変化を起点に、それが岩盤の水理にどのような影響を与え、それがさらに、人工バリア周辺の掘削影響領域の水理にどのような影響を与えていくかなどの影響の伝播について整理している。同時に、岩盤の水理の変化により、物質移行解析で考慮すべき流速がどの程度変化するかなどの物質移行解析の条件を設定していく。このような方法により、作業が容易なだけでなく、作業内容が体系的に整理され全体の把握が容易になることにより、追跡性の向上のみならず、整合性の向上にも役立つ。

最後に「Step5：影響解析」において、Step4 で設定されたモデルや解析条件を用いて物質移行解析を実施する。

(e) 作業フレームの効果

構築した作業フレームを火山活動に適用した結果、実現象を対象とした研究事例に基づき天然現象の発生から地質環境条件の変化を幅広く抽出でき、かつそれらを適切に分類・整理することにより現実的な範囲で保守的な想定に基づくシナリオを設定できるようになったことを確認した。また、それら Step1 から 3 の作業、および影響解析に係る Step4 および 5 の作業を行う際にも、既存の文献情報からのデータ・知見をその背景情報とともに理解しながら活用することができるようになったため、より現実に即し、保守側に偏らないシナリオ群を構築できるようになったことを確認できた。

また、(i)に記した、透明性、追跡性、整合性の確保および現実性の重視に関しては、以下

の効果が確認できた。

- ・評価の各ステップがある程度独立性を保ったモジュールとなっており、評価の各ステップの作業結果を定められたフォーマット(表あるいはマトリクス形式)で記述するため、作業者がどのような作業・整理・記述をすれば良いかが把握しやすくなった。また、第3者による閲覧や確認も容易となることから、作業の透明性が向上された。
- ・各ステップのアウトプット(作業結果)を次のステップのインプットとして使用していくため、評価のシナリオの追跡性・整合性の向上が図れた。
- ・天然現象影響評価の一連の作業を、天然現象研究と影響解析の専門家が分担と協働しながら作業を行うことが容易な仕組みとしたので、既存の研究から影響解析への展開の整合性、追跡性の確保が可能となり、構築したシナリオの現実性が向上し、それぞれの専門家の合意を得られやすいものになった。
- ・天然現象が発生する条件・可能性や地質環境が変化する場合・可能性などの知見まで含めて整理するので、サイトへの適用も視野に入れたシナリオの検討・分析が可能となった。

さらに、上記に関連して以下のような効果も期待される。

- ・地質環境条件の変化を THMC という共通的な着目点を用いて整理するため、データや知見について影響解析の観点から注意すべき点や着目すべき点、あるいはその処理・対処の具体例を確認することが容易となる。さらに、これをもとに、評価から天然現象研究へデータ・知見の量や品質の過不足などをフィードバックすることができる。これは一連の手順を進めるうえでの重要なコミュニケーションの促進ともなり、天然現象の研究側が影響解析への反映を意識しつつ事例研究の研究フレームを効率的に構築することにも役立つものと考えられる。
- ・作業のモジュール化のメリットとしては、ステップごとに記述・情報の追加・削除、作業方法の改良などが容易にできることが挙げられる。たとえば、天然現象に関して新しい知見が報告された場合、まず、表 4.1.2-1 の Step1 と Step2 の部分にその知見を追記することになるが、Step3 において既存の類型化ケースに分類されると判定される場合は、Step4 以降の新たな作業は不要となり、そうでない場合は Step3 において新たな類型化ケースを設定し、Step4 以降の作業を新たに行うことになる。また、どのステップのどの部分を変更・更新したか、変更点が下位のステップにどのように波及していったかを追跡することも容易になるものと考えられる。

(3) 結論

地層処分安全性に関する議論でしばしば挙げられる変動帯に属するわが国での天然現象の影響に関して、その評価に関する一連の作業を天然現象研究と影響解析の専門家が、適切に分担し、かつ必要な部分で連携・協働できる仕組みを取り入れ、シナリオの現実性、評価内容の追跡性・整合性・透明性の向上を図ることができる作業フレームを構築した。それを用いることにより、場の特徴(発生様式、影響様式、地域性など)を適切に取り込みつつ、過度な保守性を排したより現実的な天然現象影響評価を行うことを可能とした。

また、シナリオの設定とそれに対する影響解析だけでなく、天然現象が発生する条件・可能性、地質環境が変化する場合・可能性の検討を合わせて行うことにより、特定の場所についての詳細な検討を行う前の段階(たとえば、サイト選定作業の初期の段階)においては、どのような特徴をもつ地域ではどのような天然現象影響評価を行うことが考えられるのか、そのために優先的に必要な情報は何か、それを取得するにはどのような調査・検討をする必要があるのかを判断可能となる。さらに、詳細な検討の段階においては、対象となった地域において評価が必要となる天然現象とその地域性などに基づき、より詳しい評価を行う必要のあるシナリオを絞り込むための材料とすることができると考えられる。

これらのことは、天然現象影響評価の実施を容易にするばかりではなく、地層処分技術の

信頼性の向上，さらには国民の理解を得ることにもつながるものと考えられる。

(4) 今後の課題

現状は火山活動を例に，一連の作業を行うことを通じて本評価手法の適用性を確認している段階であり，今後は他の地震・断層活動，隆起・侵食，気候・海水準変動の各現象にも適用例を拡充することにより適用性をより確かなものとするとともに，現象に特徴的な問題点を抽出し，必要に応じて本評価手法に改良を加えていくことにより適用範囲を広げていく。

今回は，火山活動による火道やマグマ溜まり周辺の地質環境条件の変化についてのみ注目した例について作業を実施した。しかしながら，実際には火山活動により火山体の周辺に断層が発生することはしばしば見られることである。断層が発生するシナリオについては地震・断層活動で取扱うこととしているが，火山活動に伴う断層発生のような火山活動と地震・断層活動が複合した現象についてのシナリオについては，双方の知見を参照して検討を進める必要がある。このような複合した現象の検討は天然現象影響評価の現実性の向上には必要なことであり，今後このような現象についても作業フレームの適用を検討し，知見を蓄積していく。また，今回の検討では対象としていない火道が処分場を直撃する，あるいは断層が廃棄体を切断するような接近シナリオについても，今後本評価手法の適用を図り，知見を蓄積していく予定である。

本検討は，当面はわが国の幅広い地質環境を対象とした文献調査や事例研究の成果などを用いた検討を中心とし，実際の地質環境に適用していくとともに，個々の地質環境の特徴に応じた評価とするための適用事例の蓄積・拡充を継続する。また，同時に現象やその影響の発生条件および可能性についても知見・データの収集および検討を継続する。さらに，概要調査地区などの実際の地質環境の情報が得られれば，そこでの特徴を対象とした検討にも適用していきたいと考えている。

4.2 不確実性評価技術の高度化

地層処分の安全評価では、時間の経過に伴う地質環境条件の変化や天然の地質環境が有する場の不均質性、あるいは理解や情報の不十分さから生ずる不確実性が内在し、それらを完全に排除することは困難である。このため、シナリオ、モデル、データに関する種々の不確実性を適切に安全評価に取込み、それらの不確実性が安全評価結果に及ぼす影響を定量的に評価することが、安全評価の信頼性を向上させるための重要な課題となる（たとえば、OECD/NEA, 1991）。諸外国の安全評価においても、不確実性を重視した検討が行われている（たとえば、Nagra, 2002a；US DOE, 2001b）。また、近年のセーフティケースの議論においても、不確実性の取扱いが鍵となる論点のひとつとして挙げられている（たとえば、OECD/NEA, 2002）。

第2次取りまとめにおけるバリア性能の検討やシステムの安全性の検討では、幅広い地質環境を対象として、種々の不確実性の影響を決定論的なアプローチを用いることにより個別に評価した。それら不確実性評価の経験を通じて、以下の課題が認識された。

- ・実際の地質環境の特徴を考慮した不確実性の定量化
- ・考慮する不確実性の十分性の確認
- ・不確実性の影響度の定量的な把握
- ・不確実性の低減あるいは明確化に向けた調査・研究への効果的なフィードバック

さらに、事業や安全規制への反映の観点から不確実性評価に関する研究開発に求められるニーズは以下のように考えられる（総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会, 2003；原子力安全委員会, 2002；原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会, 2000；原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会, 2004；原子力発電環境整備機構, 2004）。

- ・処分地が持つ条件を適切に考慮した評価モデルおよびデータを設定し評価する。
- ・複数のモデルの存在やデータのばらつきなどを考慮した評価を実施することにより、モデル、データの不確実性の影響について定量的に把握する。
- ・重要な不確実性要因を特定するとともに、それらをサイト選定や設計へフィードバックし、対応策を講じることにより不確実性の低減を図る。

以上を踏まえ、本研究では、上記課題やニーズに対応した不確実性評価を実現するための検討の一環として、モデルおよびデータについての不確実性評価の基盤となる個別要素技術の向上を目的として、以下の課題を設定し取組んできた。

- ・実際の地質環境の特徴を考慮してデータ不確実性を分布として定量化する技術の開発・整備（4.2.1 項参照）
- ・データ不確実性が核種移行解析結果に及ぼす影響を定量的に評価するための技術の開発・整備（4.2.2 項参照）
- ・モデル不確実性が核種移行解析結果に及ぼす影響を定量的に評価するための技術の開発・整備（4.2.3 項参照）

なお、シナリオの不確実性に関する検討については、4.1 節において述べる。

ここで、上記課題やニーズに対応した不確実性評価を実現するためには、本研究で取組むような不確実性評価に関する個別要素技術としての手法やツールの向上を図るとともに、より広く地層処分システムの安全評価さらには、地層処分技術に関する研究開発の枠の中で、ほかの課題に関する研究開発と関連づけながら不確実性評価に関する検討をより広範囲に実施することが特に重要になる。このことは、

- ・ほかの調査・研究項目に関する研究開発の中に不確実性を見出し具体化する視点を取込むこと
- ・そこで見出された不確実性が核種移行解析結果に与える影響などを検討すること
- ・その知見を不確実性の低減あるいは明確化のための課題設定の検討に反映していくこと

- ・このような検討に必要となる手法やツールなどの個別要素技術を抽出し準備・提供すること

などの行為を有機的に関係づけながら繰り返し行うことを意味している。現時点でも個別要素技術の向上の中で一部この視点を取込んだ検討を行っているものの十分ではなく、今後重点的に取組んでいく必要がある。このような取組みを段階的に進めていくことにより、不確実性評価を地層処分技術に関する研究開発の全体に関係するものとしていくことができ、これは不確実性の取扱いを鍵とするセーフティケースの構築にも資するものとなる。さらに、このような取組みを進めることにより、手法やツールなどの個別要素技術の研究開発に関しても、それらを上記課題やニーズに実務面に対応したものとすることができるとともに、実用的なレベルで最適化・体系化していくことができる。

4.2.1 パラメータの分布設定技術の高度化

(1) はじめに

データ不確実性を適切に定量化することは、影響評価のための入力を適切に設定するとの観点から、決定論的な手法においても、確率論的な手法においても、重要な課題である。

第2次取りまとめでは、幅広い地質環境を想定し、既存の文献情報などにに基づき、想定し得るデータの不確実性を各々のパラメータの最大値および最小値として決定論的に表現した。このため、実際の地質環境の特徴を考慮した場合のデータの不確実性をパラメータの分布として表現する技術に関しては検討を実施しておらず、課題として残っていた。

また、先に述べた事業や安全規制への反映の観点からも処分地が持つ条件を考慮したデータ設定や、データのばらつきを考慮した評価によるデータの不確実性の影響の定量的な把握が重要となり、上記課題への対応の優先度は高いと考えられる。

諸外国の安全評価においても、データ不確実性をパラメータの分布として表現し影響評価に取込んでいる（たとえば、US DOE, 1998 ; Nagra, 2002a）。しかしながら、分布設定の方法として確定したものはないのが現状である。

そこで本研究では、実際の地質環境を対象とした場合に、その特徴を踏まえてデータの不確実性をパラメータの分布として定量化していくための個別要素技術を開発・整備することとした。

(2) 研究内容

(a) 分布設定手法の整理

まず、Mishra (2002) を参考にパラメータの分布設定についての方法論を整理した。整理した設定手法は以下のふたつに大別される。

- ・ 主に専門家の主観的な判断を重視した設定手法（以下、「設定手法①」という）
- ・ 主に統計的な処理を重視した設定手法（以下、「設定手法②」という）

なお、分布設定の実務においては、これら設定手法を必ずしも独立して活用するのではなく、利用可能な情報の量などに応じて相互補完的に活用することが考えられる。

設定手法①としては、個々の専門家の主観に基づく設定手法、誘出法 (elicitation protocol) に基づく設定手法、最大エントロピー原理に基づく設定手法が提案されている (Mishra, 2002 ; Trauth et al., 1994 ; Tierney, 1990)。各設定手法の特徴を表 4.2.1-1 に示す。これら手法は、利用可能な実測データが少ない場合に、特に重要になると考えられる。なお、分布設定の実務においては、これら各設定手法は必ずしも独立して活用するのではなく必要に応じて相互に設定手法の一部を活用することが考えられる（たとえば、誘出法に基づく分布設定の実務における最大エントロピー原理の活用）。

次に、設定手法②は、設定手法①と比較して利用可能な実測データが多い場合での利用が考えられ、データのばらつきを合理的に分布として表現していくことが重要となる。ここでは、利用可能なデータを品質保証などの観点からレビューした後、ヒストグラムなどでのデータ整理を介して、正規分布、対数正規分布またはワイブル分布にフィッティングすることが可能かどうかを統計的に判断する。もし、上記分布にフィッティングしない場合には、ヒストグラムなどをそのまま分布として設定することになる（図 4.2.1-1）。

表 4.2.1-1 設定手法①（主に専門家の主観的な判断を重視した設定手法）の特徴

設定手法	特徴
個々の専門家の主観に基づく設定手法	個々の専門家が独立に独自の手順で分布を設定する手法
誘出法に基づく設定手法	専門家、解析者および分布設定作業をマネジメントする管理者から構成されるチームを組織し、複数の専門家から体系的な手順で情報を引き出し分布を設定する手法
最大エントロピー原理に基づく設定手法	限られた情報から推定される分布のうちで、情報エントロピー ¹⁾ が最大となるように分布を選択する手法。 (この手法は上記ふたつの手法における分布形の選定作業において活用することも可能)

1) 情報科学の分野における不確かさを表す考え方。最大エントロピー原理を適用すると、限られた情報に対して適合する可能性があるとして推定される複数の分布のうち、分布自体の不確かさが最大となるように分布を選択することとなる。

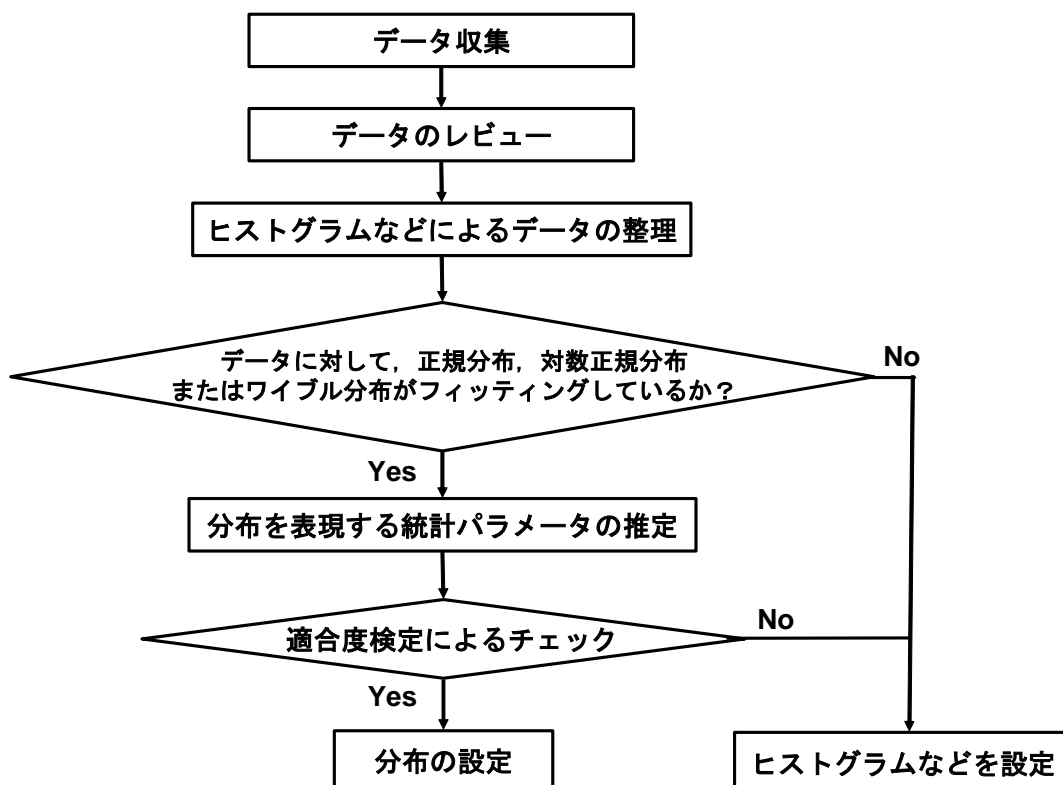


図 4.2.1-1 設定手法②（主に統計的な処理を重視した設定手法）のフロー
(Mishra (2002) に基づき整理)

(b) 試行による分布設定手法の具体化

今後の事業や深地層の研究施設計画においては、まず利用可能な実測データが少ない段階から始まると考えられる。このため、パラメータの分布設定においては、専門家が持つ利用可能な情報や知見を主に専門家の主観的な判断に基づいて処理する設定手法（(a)の設定手法①に該当）の重要性が高くなると考えられる。

そこで本検討では、(a)で整理した設定手法①のうち、利用可能な情報や知見を体系的な手順で引き出し最大限活用することにより、分布設定を行うための手法として諸外国の不確実性評価において利用実績のある(US DOE, 1998)誘出法に着目し、概念的に記述されている手順(Mishra, 2002)を作業レベルで具体化するとともに、それらの実務における留意点の把握を目的として試行した。

試行に先立ち、誘出法の各手順で実施すべき作業内容を表 4.2.1-2 の左部分のように仮設定した。これらの手順や作業内容は、試行を通じて実務に合わせ見直すこととした。

以下に、表 4.2.1-2 に沿った試行の内容とそこから得られた留意点を述べる。

まず、手順 1 の前提条件の設定において、今後のデータの拡充に基づく分布の更新なども検討に含めていくことを考慮して、検討の対象を幌延の深地層の研究施設計画とし、さらに

- ・対象領域：幌延の研究所用地周辺に存在する声問層および稚内層
- ・対象パラメータ：それぞれの層における岩盤への Cs と U の分配係数 (Kd)

を前提条件として設定した。なお、実際の処分場スケールを想定した母岩のバリア性能を定量的に評価しようとする場合においては、地質学的特徴を考慮して対象領域を分割・統合して取扱うこと、あるいは地下水流動解析などの結果と合わせて領域の広がりや不均質性を考慮することが望まれるが、本試行では利用可能な実測データが少ない段階を想定していることから、各層で均質を仮定することとした。

手順 2 での専門家の選択においては、本試行の目的が分布の設定そのものではなく手順の具体化と実務における留意点の把握であることおよび試行の容易性の観点から、サイクル機構内部の研究者(以下、「研究者」という)をあてはめた。

手順 3 の目的の詳細化においては、利用可能な実測データが少ない段階における複雑な分布設定の困難さを勘案し、以下を設定した。

- ・分布形：0, 50, 100 パーセンタイル(分布に含まれるデータを昇順に並び替えた時に、0%, 50%, 100%の位置にある値)
- ・分布の設定方針：過度に保守的ではない分布を設定する。

次に、手順 4 の基礎情報の構築では、幌延の深地層の研究施設計画で取得された各種調査や試験の結果などの情報を収集するとともに、特に情報の取捨選択をせずに研究者に提供し共有したうえで、手順 5 の事前説明、および手順 6 の情報および知見の引き出しを行った。しかしながら、この段階で、共有した情報の種類および量が多いことから、分布設定作業を行ううえでの着目点が設定しにくいこと、あるいは研究者間での情報に対する理解の程度の差が分布設定の結果に大きな影響を与える可能性のあることが判明した。このことから、利用できる情報をそのまま共有するのではなく、適切な前処理をしておくことの必要性が認識された。このための対策として、共有すべき情報を重要性に応じて整理するための手順を加えることとした(表 4.2.1-2 の A-1 から A-3)。具体的には、Kd の設定に影響を及ぼす変動要因(以下、「変動要因」という)を網羅的に整理したうえで、それを基点に、対象とする場の特徴や利用できる情報のレベルを勘案しながら、共有すべき重要な情報を絞り込むという作業を行った。具体的には、手順 A-2 において、Cs については、競合イオンおよび収着サイトの選択性の観点からトレーサー濃度、K イオン濃度および粘土鉱物の種類と存在量などが、また、U については、化学形態および錯体形成の観点から pH, Eh, 鉄鉱物の種類と存在量、CO₂濃度および有機物濃度などが変動要因として整理された。さらに、手順 A-3 において、利用可能な情報からそれら変動要因の振れ幅などを設定し研究者間で共有した。この結果、情報の共有に関しての問題は解消され、手順 6 での分布設定を進めることができるようになった。

表 4.2.1-2 誘出法の手順および誘出法に基づき具体化した作業内容

誘出法の手順		誘出法に基づき具体化した作業内容
手順1	目的の設定	前提条件 ¹⁾ の設定
手順2	専門家の選択	専門家の選択
手順3	目的の詳細化	分布形や設定方針 ²⁾ の検討
手順4	基礎情報の構築	対象領域における環境条件の情報 ³⁾ の収集
手順5	事前説明	誘出法の手順や過去の適用事例についての共有
手順6	情報および知見の引き出し	<ul style="list-style-type: none"> 分布の仮設定 上記作業内容の文書化
手順7	手順6の結果の再検討	<ul style="list-style-type: none"> 仮設定された分布における専門家間の違いの分析および専門家間での分析結果の共有 分布の再設定 上記作業内容の文書化
手順8	結果の整理	<ul style="list-style-type: none"> 再設定された複数の分布の違いの分析および専門家間での分析結果の共有（必要であれば複数の分布を1つに集約） 上記作業内容の文書化
手順9	文書化	手順1～手順8の作業内容の文書化

1) 対象領域(場や岩種など)や対象とするパラメータ(パラメータの種類や元素)
 2) 定量化における分布全体の設定の考え方(分布全体としての保守性や現実性)
 3) 主に対象領域で取得された情報

追加した手順	
手順A-1	変動要因の網羅的な整理
手順A-2	重要な変動要因の抽出
手順A-3	抽出された重要な変動要因と環境条件の情報との対応を踏まえた変動要因の振幅などの整理および専門家間での情報共有

手順 6 において仮設定された分布では、幅の下限（分配係数の場合には保守側の値）である 0 パーセントの値については研究者間のばらつきは少なかった。一方、幅の上限（分配係数の場合には非保守側の値）である 100 パーセントの値には、オーダーレベルでの違いが見られた。これは、追加した手順で共有される情報は改善されたものの、それら情報を分布設定作業の中で実際にどう使っていくかについては研究者間の相違があり、また各研究者が用いた値の導出手法の違いもあると考えられるとともに、非保守側となる幅の上限を設定することに対する研究者間の認識の違い（100 パーセントに相当する Kd 値の設定に関する複数のデータの中から、保守側のデータを選ぶか、非保守側のデータを選ぶか、代表的なデータを選ぶかなど）が関係していることが考えられた。このような認識の違いが関係しているとする、それは手順 3 において提示した「過度に保守的ではない分布を設定する」という設定方針の与え方が明確ではなかったことを意味する。そこで、特に非保守側となる幅の上限の設定に関して、「代表的な値を選択する」というより明確な方針を提示して分布の再検討を行ったところ、研究者間のばらつきは数倍程度となった。このことから、分布の保守側の値を設定する作業に比べて非保守側の値を設定する作業においては、どのような考え方で分布設定を行うかの方針を明確にすることが、研究者間で過度なばらつきを生じさせないために重要になることが分かった。なお、共有した情報の分布設定作業の中で実際の使い方や値の導出手法の違いについては、本試行ではこれ以上のすり合わせは行わなかったが、分布設定の目的に応じてこの点についてもさらなる調整を行うことは可能と考える。

以上の試行を通じて、設定手法①のひとつである誘出法について、作業内容を具体化するとともに、情報の共有や設定方針の設定に配慮することが、複数の専門家により設定された分布の過度のばらつきを避ける対策となることが分かった。また、このような作業内容の見直しや留意点の把握において、誘出法において手順が体系化されていることが有用であり、このことは実際の分布設定を目的とした場合にも、手順の各段階で内容をチェックし必要な対応をとるために有効である。以上のことから、誘出法の適用可能性について見通しを得た。

(c) パラメータ分布設定に関する情報の体系の検討

(b)における誘出法の試行において、専門家間での情報共有の重要性が見出された。このことから、パラメータの分布設定においては、当該パラメータに関する直接的な情報（実測データなど）のみならず、関連する現象理解の情報や地質環境条件の情報も含めて利用可能な情報を幅広く収集するとともに、共有すべき情報の取捨選択を体系的に行うことが必要になる。この観点から、利用する情報の種類および取捨選択のプロセスに着目して、パラメータの分布設定に関する情報の体系を整理した（図 4.2.1-2）。

整理においては、情報の種類を、前提条件（対象とする領域およびパラメータ）、環境条件の情報、実測データおよび現象理解の情報に分類した。そのうえでまず、利用可能なすべての情報を初期情報として定義した。この初期情報は、前提条件との整合などを確認しつつ有効な情報が抽出され、分布設定の基盤情報あるいは分布設定に直接使用する情報として整理する。このプロセスは、(b)で示した誘出法の手順 6 および手順 A-1～A-3（表 4.2.1-2 参照）に該当する。なお、このプロセスでは、分布設定における使われ方の違いに応じて情報をさらに細かく分類しておく（たとえば、実測データを対象領域で取得された実測データ、対象領域に類似する条件で取得された実測データに分割する）。

このような情報の体系を意識しながら(b)で示した誘出法の手順を実施することにより、パラメータの分布設定に用いる情報の意味が明確になるとともに、情報の取扱いや利用に統一性を与えることができる。

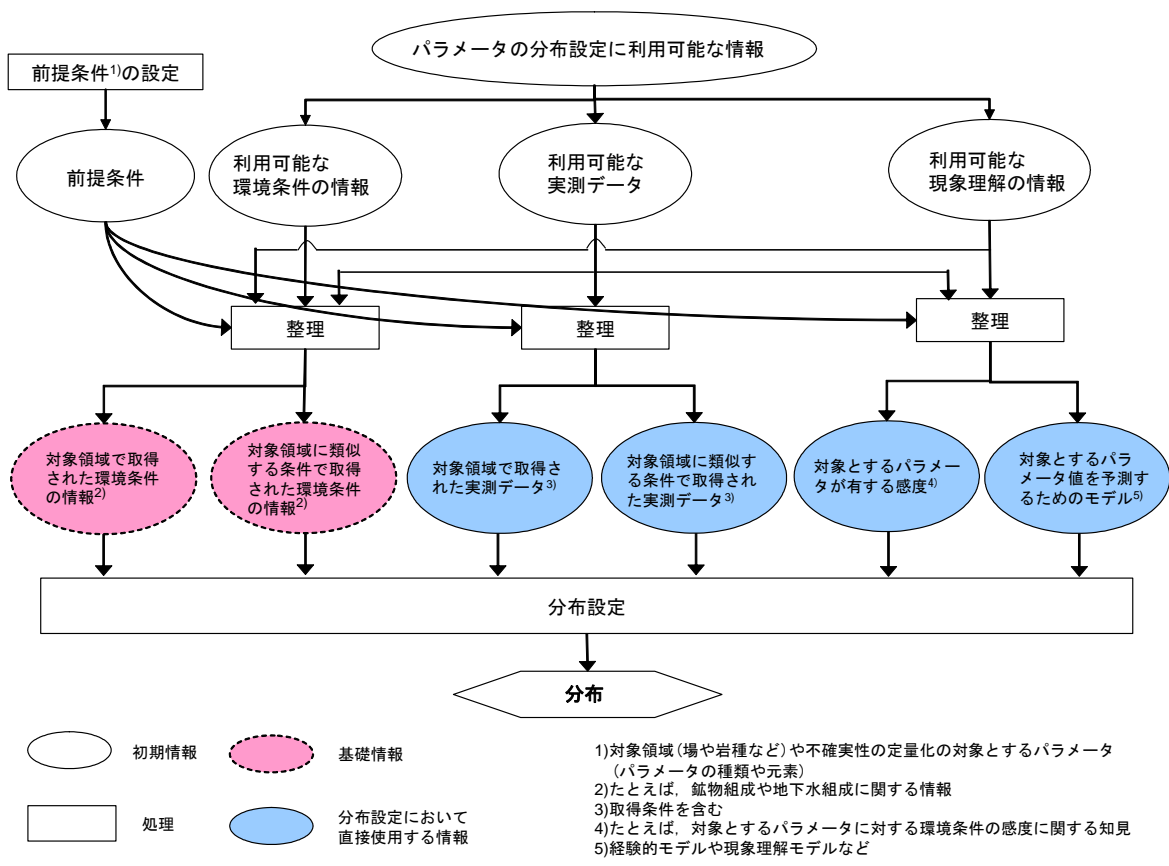


図 4.2.1-2 パラメータの分布設定に関する情報の体系

(3) 結論

第2次取りまとめでは検討の対象としていなかった実際の地質環境の特徴を考慮した場合のパラメータの分布設定技術について検討した。具体的には、分布設定の手法を、主に専門家の主観的な判断を重視した設定手法と主に統計的な処理を重視した設定手法とに整理するとともに、前者に属する分布設定手法のひとつである誘出法について、実際の地質環境の特徴を考慮した分布設定を試行することにより、誘出法の手順の具体化や留意点の抽出を行い、誘出法の適用可能性についての見通しを得た。さらに、誘出法などを用いた分布設定で意識すべきパラメータ分布設定に関する情報の体系を整理した。これらの検討により、不確実性評価の入力情報として必要なパラメータの分布を妥当性を向上させて設定するためには、複数の専門家による過度のばらつきを避けるうえで、パラメータの分布設定に関する情報を変動要因という観点から選別し専門家間で共有すること、およびパラメータの分布設定に関する情報を体系的に整理しておくことが有効であるとの知見を得た。

(4) 今後の課題

以上を踏まえ、パラメータの分布設定技術について、今後は以下の課題について取り組んでいく予定である。

- ・対象パラメータの拡張および誘出法以外の設定手法の適用を含めた試行を通じた、実測データの有無、対象とする地質環境条件に関する情報の種類や量、あるいは専門家の知見の充足度などに応じたパラメータの分布設定を実施するための技術の整備。
- ・調査研究の進展に伴い段階的に追加される情報を分布設定に適切に反映する技術の整備。
- ・上記検討を通じた、パラメータ分布設定技術の体系化と実務上の留意点やノウハウの整備。

4.2.2 データ不確実性の影響評価技術の高度化

(1) はじめに

第2次取りまとめでは、レファレンスケースを基準として、システムの多様性やデータの不確実性を整理し、これらの不確実性の影響を個別に評価した。さらに、これらの不確実性を合理的に組み合わせることにより、処分システムの性能を把握する解析を決定論的に実施し、それぞれの結果をレファレンスケースの結果と比較することで、不確実性の影響を検討した。

このような決定論的解析では、

- ・個々の不確実性の取扱いと解析結果との対応が分かりやすいこと
- ・結果に対する不確実性のレスポンスを把握することが容易であること

などの利点が挙げられるが、一方で、

- ・評価において考慮すべき不確実性の組み合わせが適切であるか、あるいは不確実性が網羅的に考慮されているかどうかを確認することが困難であること
- ・複数の不確実性を同時に考慮した場合に影響度の高い不確実性を定量的に示すことが困難であること

などの課題も挙げられる（たとえば、OECD/NEA, 1997）。

データ不確実性については、先に述べた事業や安全規制への反映の観点からも、データのばらつきを考慮した評価によるデータの不確実性の影響の定量的な把握および重要な不確実性要因の特定とサイト選定や設計へのフィードバックに関する技術の向上が重要となる。

また、諸外国の安全評価においても、データ不確実性の影響に関する評価が精力的に行われており、決定論的な手法以外に確率論的な手法を用いている場合も多い（たとえば、US DOE, 1998 ; Nagra, 2002a）。

そこで本研究では、データ不確実性を網羅的に取込んだ核種移行解析の実施、およびその結果に基づく重要因子の抽出や影響度の分析を行うための基盤技術として以下の検討を行った。

- ・データ不確実性の組合せの影響を網羅的かつ効率的に評価することが可能な核種移行解析モデルの開発・整備（以下、「データ不確実性の影響評価技術」という）
- ・データ不確実性の核種移行解析結果への影響度に関する知見を得るための分析技術の開発・整備（以下、「データ不確実性の感度分析技術」という）

(2) 研究内容

以下、(i)にデータ不確実性の影響評価技術の検討内容、(ii)にデータ不確実性の感度分析技術の検討内容について述べる。

(i) データ不確実性の影響評価技術

(a) 核種移行解析モデルの構築

第2次取りまとめでは、個々のデータの不確実性および影響の大きなデータの不確実性を組み合わせた場合の影響は評価したものの、多数のデータの不確実性が同時に寄与する場合における不確実性の影響度については検討していなかった。このため、データの不確実性の影響を網羅的かつ効率的に評価することが可能な核種移行解析モデルを新たに構築した（Wakasugi et al., 2000 ; 若杉ほか, 2002）。

モデル構築においては、データの不確実性による影響を評価するために必要な入力パラメータ値の統計的サンプリング機能や、複数の入力データセットに対する繰り返し計算機能が整備されており、モンテカルロシミュレーションなどの確率論的な解析に適している確率論的シミュレーションプラットフォーム GoldSim (Golder Associates, 2002) を用いて、第2

次取りまとめでの人工バリア中核種移行解析および天然バリア中核種移行解析のモデルに準拠したモデル化を行った。なお、GoldSim は、諸外国の安全評価で使用された実績を有する（たとえば、US DOE, 1998）。

図 4.2.2-1 に、GoldSim を用いた核種移行解析モデルの画面上のイメージを示す。なお、構築したモデルについては、第 2 次取りまとめの人工バリア中および天然バリア中での核種移行解析で用いた解析コードとの検証を行い、正しくモデル化されていることを確認している（若杉ほか, 2002）。

構築したモデルを用いてモンテカルロシミュレーションを行う準備として、まず、表 4.2.2-1 に示す 55 の不確実性パラメータとその幅および分布形を、第 2 次取りまとめにおいてまとめられた情報（東ほか, 1999；柴田ほか, 1999；澁谷ほか, 1999）を参考に設定した。なお、現段階でパラメータ間での相関関係が設定できる場合には、その相関関係を考慮した（たとえば、亀裂開口幅を透水量係数に基づき設定）。

以上の情報に基づき、モンテカルロシミュレーション（500 リアライゼーション）を行った。なお、モンテカルロシミュレーションにおいて分布からパラメータ値をサンプリングする手法として、ランダムサンプリング法より少ないサンプリング回数で、ランダムサンプリング法と同等の網羅的な組み合わせを作成することが可能な LHS（Latin Hypercube Sampling）法（Mckay and Beckman, 1979）を用いた。

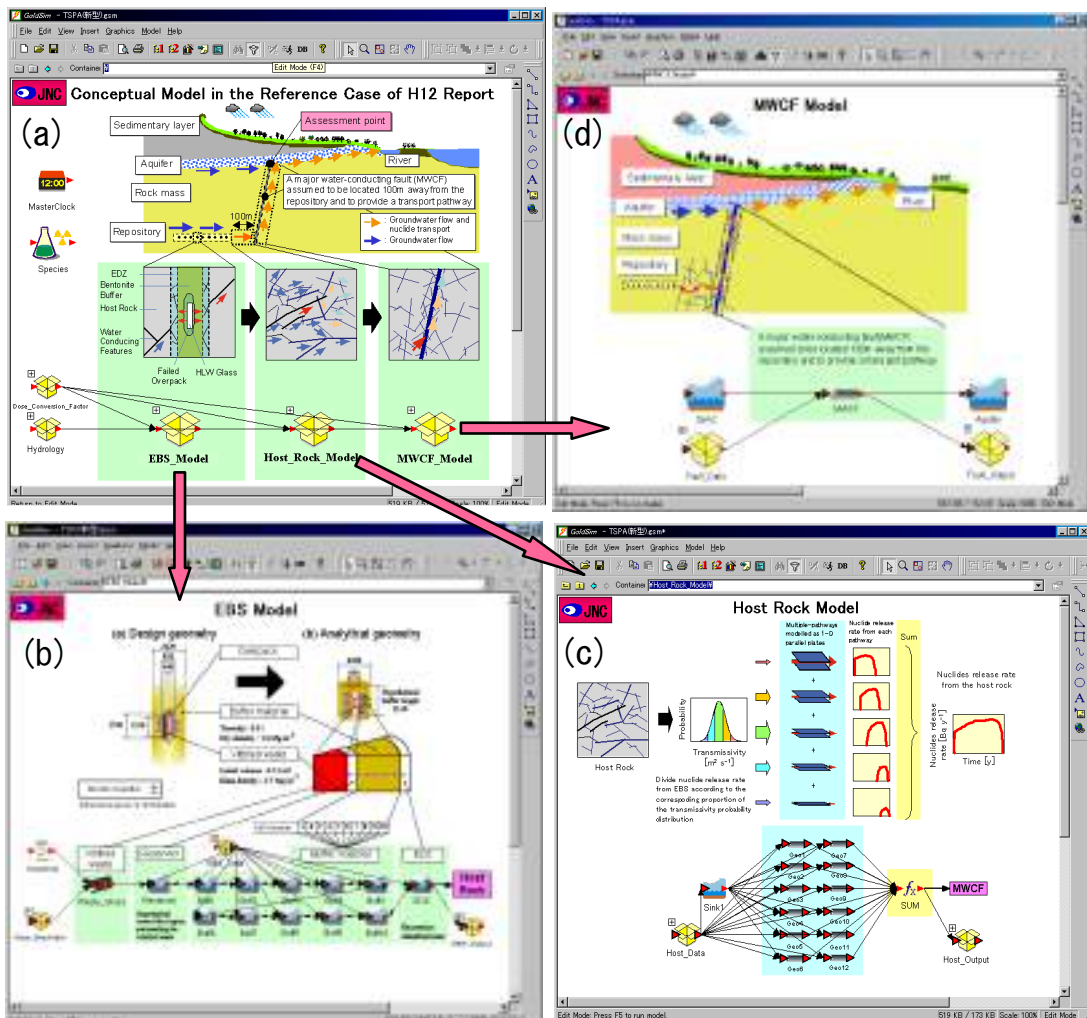


図 4.2.2-1 GoldSim を用いた核種移行解析モデルの画面上のイメージ
 ((a)概念モデル, (b)人工バリア, (c)天然バリア（母岩）, (d)天然バリア（断層）

表 4.2.2-1 モンテカルロシミュレーションで考慮するパラメータとその分布

元素	溶解度 [mol l ⁻¹]	分配係数 (緩衝材) [m ³ kg ⁻¹]	分配係数 (岩盤) [m ³ kg ⁻¹]
Se	U _L [10 ⁻¹⁰ , 10 ⁻⁶]	U[0, 10 ⁻¹]	U[0, 10 ⁻¹]
Zr	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U[10 ⁻¹ , 1.5 × 10 ¹]	U _L [10 ⁻² , 10 ¹]
Tc	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U _L [10 ⁻¹ , 2 × 10 ¹]	U _L [5 × 10 ⁻² , 10 ²]
Pd	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U[10 ⁻¹ , 5 × 10 ⁻¹]	U _L [5 × 10 ⁻² , 1]
Sn	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U _L [1, 2 × 10 ¹]	U _L [10 ⁻¹ , 10 ²]
Cs	可溶性	U[10 ⁻² , 5 × 10 ⁻²]	U _L [10 ⁻³ , 10 ¹]
Pb	U[10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U[10 ⁻¹ , 5 × 10 ⁻¹]	U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]
Ra	U _L [10 ⁻¹⁴ , 10 ⁻¹]	U[10 ⁻² , 2 × 10 ²]	U[5 × 10 ⁻² , 5 × 10 ¹]
Ac	Amのアナログ	U[1, 5]	U _L [5 × 10 ⁻² , 5 × 10 ¹]
Th	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	Uのアナログ	U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]
Pa	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	Snのアナログ	U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]
U	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U _L [1, 5 × 10 ¹]	U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]
Np	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	Uのアナログ	U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]
Pu	U _L [10 ⁻¹⁰ , 10 ⁻²]	U[10 ⁻¹ , 10 ²]	U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]
Am	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻²]	U[10 ⁻¹ , 5 × 10 ¹]	U _L [5 × 10 ⁻² , 5 × 10 ¹]
Cm	Amのアナログ	Amのアナログ	U _L [5 × 10 ⁻² , 5 × 10 ¹]
Nb	U _L [10 ⁻⁸ , 10 ⁻¹]	U[1, 10 ¹]	U _L [10 ⁻² , 10 ¹]
Sm	Amのアナログ	Acのアナログ	U _L [5 × 10 ⁻² , 5 × 10 ¹]
パラメータ			分布
ガラス溶解速度 [g m ⁻² d ⁻¹]			U _L [10 ⁻⁴ , 10 ⁻²]
拡散係数 (Cs, Seを除く) [m ² y ⁻¹]			U[6 × 10 ⁻³ , 7 × 10 ⁻²]
Csの拡散係数 [m ² y ⁻¹]			U[2 × 10 ⁻² , 2 × 10 ⁻¹]
Seの拡散係数 [m ² y ⁻¹]			U[7 × 10 ⁻³ , 2 × 10 ⁻²]
透水量係数分布の平均値 [m ² s ⁻¹]			U _L [10 ⁻¹¹ , 10 ⁻⁹]
縦方向分散長 [m]			U _L [1, 10 ²]
マトリクス拡散深さ [m]			U _L [3 × 10 ⁻² , 1]
マトリクス拡散容与面積率 [%]			U[10, 10 ²]
岩盤の間隙率 [-]			U[10 ⁻² , 3 × 10 ⁻¹]
亀裂開口幅 (2b) と透水量係数 (T) の関係式の係数 (c) : 2b=c√T			U _L [10 ⁻¹ , 10 ¹]

U : 一様分布, U_L : 対数一様分布

(b) 解析結果と考察

モンテカルロシミュレーションの結果については、各リアライゼーションについて、それぞれの核種の時間ごとの線量の和（以下、「総線量」という）の経時変化、および総線量の最大値に着目した。図 4.2.2-2 に 500 リアライゼーション分の総線量の最大値を示す。なお、結果の平均および分散の収斂に対して 500 リアライゼーションが十分な数であることを確認している。

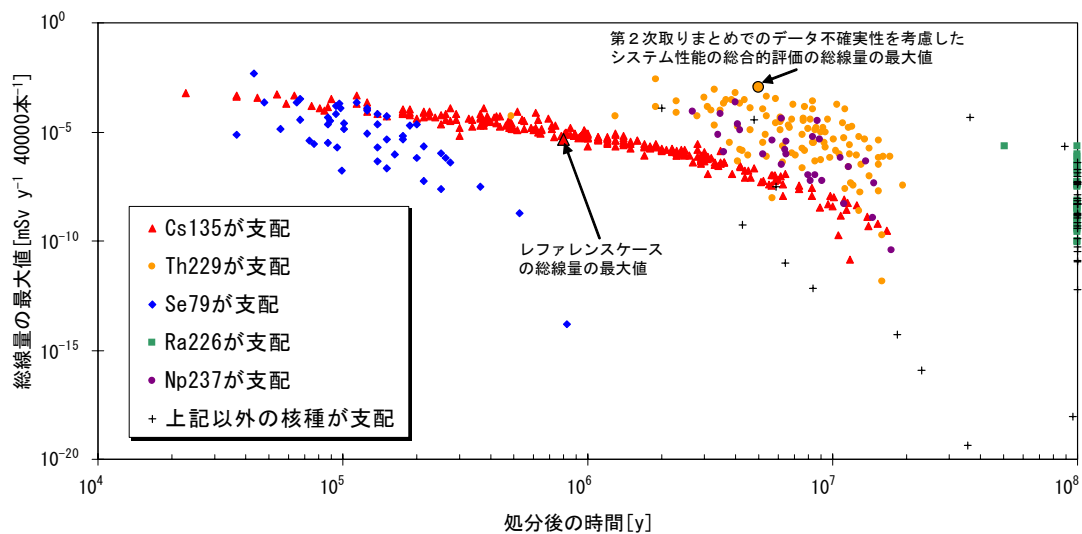


図 4.2.2-2 モンテカルロシミュレーションから得られた総線量の最大値の散布図 (各プロットのシンボルは総線量が最大となるとときに最も支配的な核種を示す)

図 4.2.2-2 より、複数のリアライゼーションから得られた総線量の最大値は広範囲にわたって分布しているが、総線量の最大値の支配核種に着目した場合には、たとえば、総線量の最大値が大きく発生する時間が遅いケースの集団などのように、結果をいくつかの集団に分類することができる。これは、結果がランダムに分布するのではなく偏りがあり、類似した特徴を有する集団として類型化できる可能性を示唆している。

また、図 4.2.2-2 では、第 2 次取りまとめにおける影響の大きいデータの不確実性の組み合わせを考慮したケースでの総線量の最大値をプロットしており、このケースでの総線量の最大値は、55 のパラメータの不確実性を同時に考慮することにより十数オーダーにわたって分布しているモンテカルロシミュレーション結果の上限値とほぼ等しいことが分かる。このことから、第 2 次取りまとめでの不確実性の評価において、影響の大きいデータ不確実性が適切に抽出され、その組合せにより不確実性の影響の上限を押さえることができていたことを確認した。

このことは、データの不確実性の影響評価において、不確実性の上限値を把握することを目的とする場合には、決定論的な手法と確率論的な手法の有用性に優劣があるわけではないことを示唆している。また、上記検討のように、両方の手法で評価を行い、結果を比較・確認するという相互補完的な使い方以外にも、それぞれの方法の特徴を踏まえると、たとえば、

- ・ 確率論的な手法で全パラメータの分布を取込んだ予備的な解析を行う。
- ・ その結果に対して(b)で述べるような感度分析により重要なパラメータを絞り込む。
- ・ 絞り込んだパラメータに対する 4.2.1 項で述べたような方法を用いたより詳細な分布の設定を行う。
- ・ その分布の最大・最小を組み合わせた決定論的な手法での解析を行う。

などの手順により、考慮すべき不確実性の十分性、パラメータの不確実性と影響の関係の明確化および効率的な評価を両立したデータ不確実性に関する評価が行える可能性もある。

(ii) データ不確実性の感度分析技術

(i)で示したような、多数のパラメータに関するデータの不確実性を同時に考慮するモンテカルロシミュレーションの結果から、どのデータの不確実性の影響が大きいかなどの知見を得るためには、感度分析を行う必要がある。ここでは、まず、(a)において感度分析についての検討を進めるにあたっての基本的な方針を整理する。それを踏まえ、(b)と(c)において(i)で示したモンテカルロシミュレーションの結果を例に、多変量解析手法を用いた感度分析の実施例を示す。

(a) 感度分析の基本的な方針の整理

考慮したデータの不確実性と結果のばらつきとの関係の分析を進めることに関して、まず、感度分析結果の反映先について整理した。これは、感度分析が単に重要な不確実性を明らかにするだけではなく、最終的にはデータ取得や調査・研究の優先度づけを含む研究開発の進め方へのフィードバックも視野に入れて分析を行うことが必要であると考えているためである。さらに、モンテカルロシミュレーションの結果の何に着目して感度分析を進めるのか(目的の検討)を整理しつつ、どのような多変量解析手法(分析手法)を適用することが適切なのかなどについて検討した(図 4.2.2-3)。

なお、モンテカルロシミュレーションにおける入出力の関係が非常に複雑であること、さらには各分析方法にはそれぞれ長所・短所が存在することなどから、分析の目的を決めたとしてもそれに対する唯一の最適な分析方法を見出すことは困難である。このため、複数の分析方法を試行すること、あるいは複数の分析方法を組み合わせる用いることが有効であると考えられる。図 4.2.2-3 のような整理を充実させることにより、反映先や目的に応じた有効性の高い分析方法を効率的に見いだすことが可能になると考えられる。

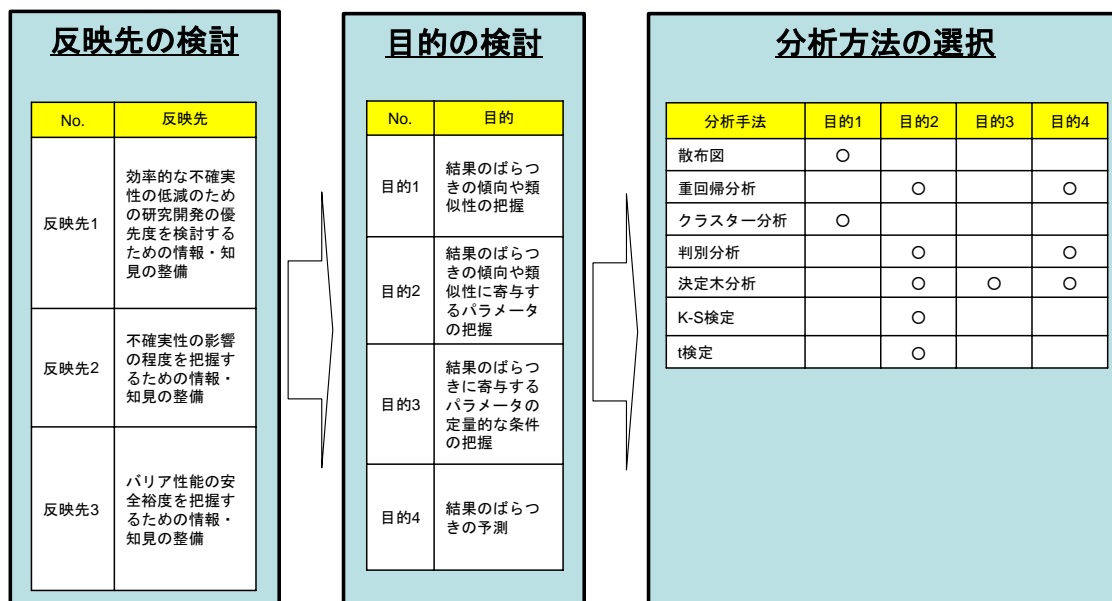


図 4.2.2-3 感度分析の基本的な方針の整理例

本検討では、分析結果の反映先として研究開発の優先度を検討するための情報・知見の整備を想定して、

- ・複数の多変量解析手法の組合せ
- ・大規模なデータから情報を抽出するデータマイニングの分野で利用されている決定木解析手法

に着目して、(i)で示したモンテカルロシミュレーションの結果に対する分析手法の構築と適用性の検討を行った。

(b) 複数の多変量解析手法の組合せ

地層処分安全評価の特徴として、複数のパラメータの影響があるひとつの解析結果（たとえば、総線量の最大値）へと対応づけられるため、入出力の関係が非線形になることが挙げられる。このため、総線量の最大値とパラメータの関係に対して通常の全域的な線形回帰モデルが適合しにくいという問題を生ずる。この問題に対して、既存の多変量解析手法であるクラスタ分析と重回帰分析を組み合わせた感度分析手法の適用を試みた(若杉ほか, 2002)。

まず、(i)で行ったモンテカルロシミュレーションでの総線量の最大値（図 4.2.2-2）に対して、類似性を有するいくつかの集団（以下、「クラスタ」という）にグルーピングすることを目的としてクラスタ分析を実施した。具体的には、総線量の最大値について、階層型クラスタ分析法を適用し、全リアライゼーションでの総線量の最大値（対数）とその最大値が生ずる時間（対数）に対してユークリッド平方距離を求め、その距離が近いもの（すなわち類似度が高いもの）から逐次クラスタに統合していくことにより、複数のクラスタにグルーピングした。クラスタの構成手法は、ウォード法（Ward, 1963）を用いた。クラスタ分析の結果を図 4.2.2-4 に示す。クラスタ 1 はおよそ 2×10^6 年までに総線量が最大値を生ずるケースの集団であり、処分後の比較的早い時期に総線量が最大値となるケースも含まれている。クラスタ 2 はクラスタ 1 の後に総線量が最大値を生ずる比較的高い線量のケースの集団であり、クラスタ 3 は総線量の最大値が生ずる時間が遅く、線量も比較的低いケースの集団となった。

次に、クラスタ分析により類似性を持つ集団としてグルーピングされた3つのクラスタについて、それぞれのクラスタに含まれる総線量の最大値の変動に顕著な影響を持つパラメータを定量的に把握することを目的として、総線量の最大値を目的関数、表4.2.2-1に示した55の不確実性を有するパラメータを説明変数として重回帰分析を行った。重回帰分析においては、単位や分布幅の違いの影響を取り除くために、パラメータおよび総線量の最大値に対して平均が0で分散が1となるように標準化を行った。総線量の最大値の変動に対する各パラメータの影響度は標準化偏回帰係数で表現され、この値の絶対値が大きいパラメータほどクラスタ内での総線量の最大値の変動に対して顕著な影響を有することを示す。表4.2.2-2に、各クラスタに含まれる総線量の最大値を対象とした重回帰分析の結果から示された顕著な感度を有するパラメータを、全リアライゼーションでの総線量の最大値を対象とした全域的な重回帰分析の結果とともに示す。表4.2.2-2より、最も感度が高いパラメータはすべてのクラスタで共通であるが、それ以外のパラメータの感度についてはクラスタ間で違いが生じている。たとえば、岩盤に対するCsの分配係数の感度は、全リアライゼーションおよびクラスタ1では2番目であるが、クラスタ2および3ではそれぞれ3番目および5番目となり重要性が相対的に変化することが把握できる。また、クラスタ3のみ岩盤に対するThの分配係数の感度が高くなることなども把握できる。

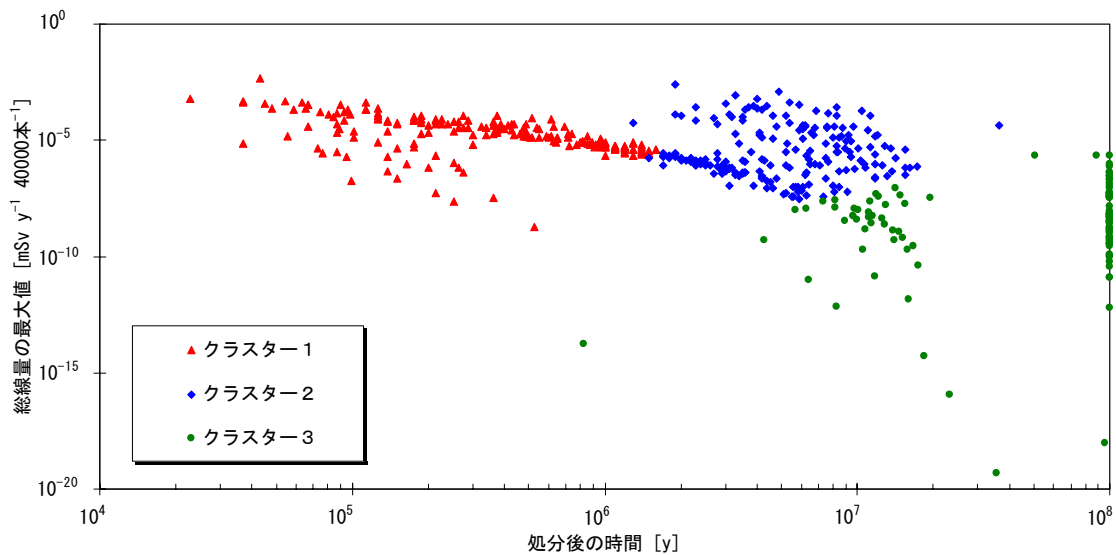


図 4.2.2-4 モンテカルロシミュレーションから得られた総線量の最大値に対するクラスタ分析の結果

表 4.2.2-2 クラスタ分析と重回帰分析を組み合わせた複合的な手法による感度分析の結果*

順位	全リアライゼーション**	クラスタ1	クラスタ2	クラスタ3
1	透水量係数の平均値 (正)	透水量係数の平均値 (正)	透水量係数の平均値 (正)	透水量係数の平均値 (正)
2	岩盤に対するCsの分配係数 (負)	岩盤に対するCsの分配係数 (負)	マトリクス拡散深さ (負)	マトリクス拡散深さ (負)
3	マトリクス拡散深さ (負)	マトリクス拡散深さ (負)	岩盤に対するCsの分配係数 (負)	岩盤に対するUの分配係数 (負)
4	マトリクス拡散寄与面積率 (負)	マトリクス拡散寄与面積率 (負)	マトリクス拡散寄与面積率 (負)	岩盤に対するThの分配係数 (負)
5	-	ガラスの溶解速度 (正)	Npの溶解度 (正)	岩盤に対するCsの分配係数 (負)

*: 正の相関は当該パラメータの増加により総線量の最大値が増加し、負の相関は当該パラメータの増加により総線量の最大値が減少することを示す。

** : 5番目以降のパラメータの感度は無視できるほど小さい。

以上の検討により、結果のばらつきの傾向や類似性の把握を目的として、クラスタ分析により類似性を有する結果をグルーピングしたうえで、重回帰分析を行うという複合的な方法を適用することにより、全域的な重回帰分析で抽出されるような全域的に影響の大きなパラメータの感度に加えて、全域的な重回帰分析では見落とされる可能性のある局所的に重要性が変化するパラメータの感度についてもより詳しく把握できることを確認した。

また、この検討から、分析の対象と目的に応じて、複数の多変量解析手法を組み合わせることの有効性が示された。

(c) 決定木分析

次に、結果のばらつきに寄与するパラメータのみならず、その定量的な条件を把握することを目的として、データマイニング手法のひとつである決定木分析 (Decision Tree Analysis) (ベリー・リノフほか, 1999) と呼ばれる比較的新しい手法について適用性の検討を行った (仲島・牧野, 2005)。

決定木分析では、分析を行う対象となる事例群 (目的変数) をいくつかのカテゴリーに分けたうえで、目的変数に関係を持つ複数の変数 (説明変数) の中から、ある事例がどのカテゴリーに属するかのもっとも効率的な判別を行うための重要度の高い説明変数を自動的に選択し、かつ、その判別のための定量的な条件 (パラメータ値の範囲) を見出す。これを順次実行することにより、全事例を枝分かれ状に階層的に細分化し、最終的にはある説明変数とその定量的な条件の組み合わせにより特定のカテゴリーに属すると判別された事例の小グループに分ける。これにより核種移行解析結果のばらつき (決定木分析では複数のカテゴリーとして表現する) に対して、そのばらつきの発生に寄与するパラメータとその定量的条件を把握することができる。

ここでは、(i) で行ったモンテカルロシミュレーションでの総線量の最大値 (図 4.2.2-2) を感度分析の対象とし、

- ・総線量の最大値を 3 桁ずつのグループでカテゴリー化した場合 (ケース 1 : 図 4.2.2-5)
- ・総線量の最大値を第 2 次取りまとめのレファレンスケースにおける総線量の最大値 ($1.2 \times 10^{10} \text{ mSv y}^{-1} \text{ 本}^{-1}$) を基準として、それよりも高い結果と低い結果のふたつのグループでカテゴリー化した場合 (ケース 2)

のふたつのケースについて決定木分析を行った。この分析では、カテゴリー分けされた総線量の最大値を目的変数、モンテカルロシミュレーションで考慮した 55 のパラメータを説明変数として設定し、それらのカテゴリーの違いを特徴づけるパラメータとその定量的条件を抽出した。

決定木分析の結果、モンテカルロシミュレーションで考慮した 55 のパラメータのうち、ケース 1 では 4 つ、ケース 2 では 3 つのパラメータとその定量的な条件 (パラメータ値の範囲) の組み合わせのみで各カテゴリーの違いを特徴づけることができた。図 4.2.2-6 にケース 1 についての決定木を示す。なお、図中のパラメータの定量的条件として示されている数値は、単位や値の範囲が異なる複数のパラメータ間での比較を容易にするために、モンテカルロシミュレーションで用いたパラメータの値の範囲を 0~1 で規格化したものである。

ここで、決定木分析から出力される結果では、ひとつのカテゴリーに対して重要なパラメータとその定量的条件の組合せが重複を含みつつ複数存在し、分析結果の全体像を把握することが必ずしも容易でない場合がある。そのため、判別に用いられた重要パラメータの定量的条件と判別結果の関係を分かりやすく整理し直すことを検討した。ケース 1 についての整理結果を図 4.2.2-7 に示す。図中のプロットが実際の事例を表しており、また、色のエリアが各カテゴリーへの判別に用いられたパラメータの定量的条件を表している。このような形で決定木分析から得られる重要パラメータとその定量的条件に関する情報を一元的にまとめることにより、どのパラメータがどのような条件の時にカテゴリーの違いが生ずるかを一目で

把握することができる。

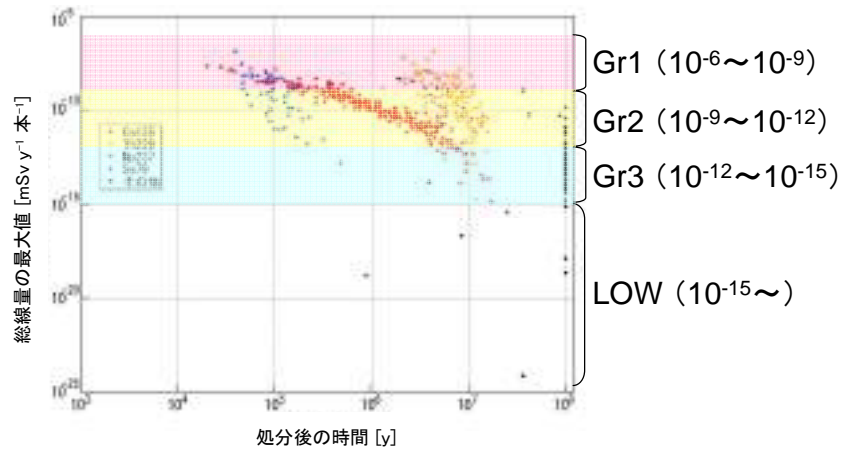


図 4.2.2-5 決定木分析で考慮するカテゴリーとその範囲の例 (ケース 1)
(総線量の最大値を3桁ずつのグループでカテゴリー化した場合)

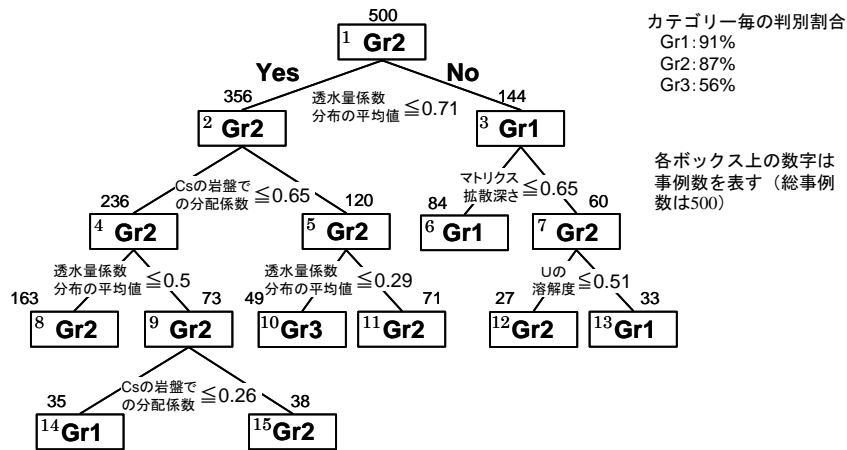


図 4.2.2-6 決定木分析の結果得られる決定木の例 (ケース 1)

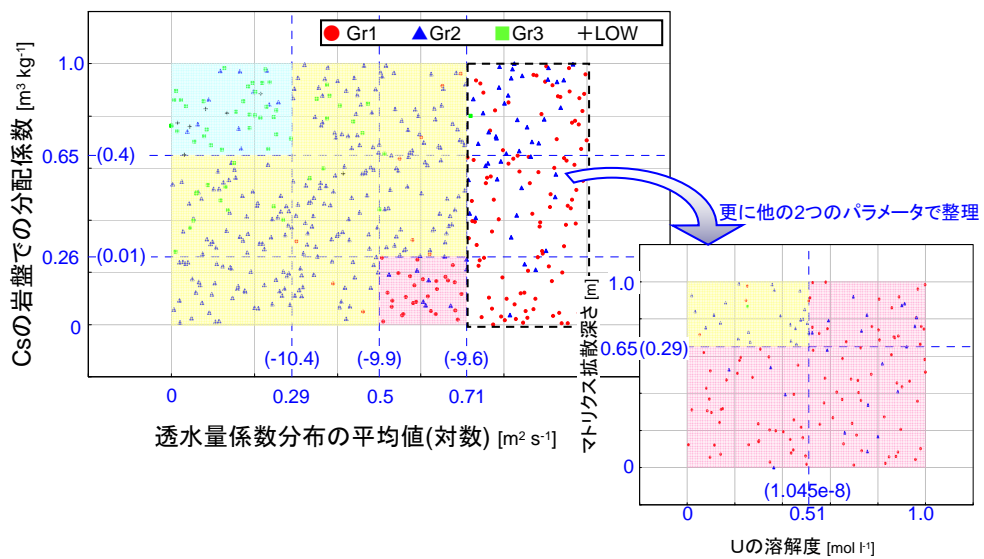


図 4.2.2-7 決定木分析の結果得られる重要パラメータの定量的条件と判別結果の関係の整理の例 (ケース 1)

上記の決定木分析結果の妥当性を確認するために、ケース 1 に対して、判別に特化した手法である判別分析（室・石村，1999）との比較を実施した。その結果、判別に用いられるパラメータの数が判別分析の 11 に対して決定木分析では 4 と大きく低減するにも拘らず、同等の判別能力を有することを確認した。

以上のことから、決定木分析の適用の試みを通じて、カテゴリーの違いを特徴づける重要度の高いパラメータ（本検討のケース 1 と 2 においては、透水量係数分布の平均値、Cs の岩盤での分配係数など）を、核種移行解析で考慮する多数のパラメータの中から効率的に抽出することに加え、カテゴリーの違いを特徴づける複数のパラメータの定量的な条件の組み合わせを具体的に提示できることを確認した。

ここで、決定木分析によりパラメータの定量的な条件が得られることは、カテゴリーの違いを少数のパラメータの組合せにより具体的かつ定量的に説明するために有効であるだけでなく、その結果はさらに以下のような検討にも活用していくことができる。

- ・あるパラメータの定量的な条件が与えられたときに、総線量の最大値がどのカテゴリーに属するかを容易に予測できる。
- ・パラメータの不確実性（値の範囲）が減少した場合に、総線量の最大値がどのように変化するかへの応答をカテゴリー単位で容易に予測することができ、調査・試験による不確実性低減の目安を与えることができる。
- ・定量的な条件を用いて上記検討が行えるため、調査・研究側と具体的な議論が容易となる。

これらのことから、感度分析手法のひとつとして、決定木分析が有効に使える見通しを得た。

なお、ケース 1 や 2 以外のカテゴリー分けをした場合についても分析を試みた結果、総線量の最大値を 2 桁ずつグループ化するなどカテゴリー分けを細かく設定した場合には判別の精度が低下する場合があることも分かった。このような課題については、今後さらに検討していく予定である（仲島・牧野，2005）。

(d) 感度分析結果の利用

(b)と(c)で示した感度分析の結果から、天然バリア中での核種移行解析で考慮する地下水の流速に関する透水量係数、人工バリアや天然バリア中での移行遅延効果に関する分配係数、マトリクス拡散深さ、溶解度などのパラメータの重要性が見出された。また、分配係数や溶解度などの元素依存性のあるパラメータについては、どの元素が重要かについても知見が得られた。これらは、体系的なフィードバックの体制とまではなっていないが、ENTRY, QUALITY あるいは幌延の深地層の研究施設計画におけるデータ取得の優先度の検討や計画の新規立案および既存計画のレビューなどに適宜反映している。

(3) 結論

第2次取りまとめ以降の検討により、データ不確実性の影響評価およびデータ不確実性の感度分析について、主に以下の成果が得られた。

- ・データ不確実性の影響評価技術
第2次取りまとめで行った個々の不確実性の要素に対する決定論的な手法での影響の定量化に対して、複数のデータ不確実性が同時に寄与する場合における不確実性の影響を網羅的かつ効率的に解析することが可能な核種移行解析モデルを構築し、モンテカルロシミュレーションを実施した。この結果、第2次取りまとめでの決定論的な手法によるデータ不確実性の影響評価結果の妥当性を確認した。これらの検討により、決定論的な手法と確率論的な手法を相互に補完的に用いることにより、不確実性評価の信頼性と効率を向上させることができる見通しを得た。
- ・データ不確実性の感度分析技術
データ不確実性の影響評価で行ったモンテカルロシミュレーションの結果に基づき、どのデータ不確実性が結果に対して重要な影響を及ぼすのかを把握するための手法として、従来の重回帰分析だけではなく、クラスタ分析、決定木分析、判別分析などの手法を分析の目的に応じて使い分けるあるいは組み合わせることを試みた。その結果、複数の分析手法を組み合わせることで用いることにより、データの不確実性と結果の間に存在する非線形的な複雑な関係を、より効果的に解きほぐすことができること、および決定木分析手法を用いることにより、重要なパラメータの定量的条件という有用な情報を抽出できることについて見通しを得た。これらの検討により、分析の目的に応じて分析手法を使い分けるあるいは組み合わせることの有効性を確認した。

(4) 今後の課題

以上を踏まえ、今後のデータ不確実性の影響評価技術に関する検討では、開発・整備した基盤技術の拡充、および深地層の研究施設計画を含む実際の地質環境条件に関する情報と関係づけた適用性の確認・向上などのために、以下の課題を設定し取組んでいく予定である。

- ・データ不確実性の影響評価技術
 - 実際の地質環境を対象にしたパラメータ分布の設定に関する検討結果(4.2.1項参照)、あるいはほかの調査・研究項目の研究開発で見出せる不確実性の順次取込み(4.2節参照)
 - パラメータの相関に関する知見の順次取込み
- ・データ不確実性の感度分析技術
 - 感度分析をより効率的かつ効果的に実施するための手法の拡充および体系化
 - データ不確実性の影響評価の結果に対する上記分析手法の適用を通じた適用事例の蓄積と適用ノウハウの整備
 - 調査・研究を段階的かつ効果的に進めていくうえでの感度分析結果に基づくフィードバックの考え方や手法の構築、および適用事例の蓄積

4.2.3 モデル不確実性の影響評価技術の高度化

(1) はじめに

第2次取りまとめでは、レファレンスケースを定義し、モデル不確実性の影響を評価する解析ケースにおいて、このレファレンスケースに対して代替的なモデルを設定し、影響を評価した。なお、レファレンスケースでは、安全機能がすべて発揮されると仮定して、概念モデルおよび数学モデルを構築した。

第2次取りまとめ以降の課題としては、

- ・簡略化されたプロセス
- ・保守的にその効果を見逃したプロセス
- ・保守性の程度が十分に確認されていないプロセス

などを中心に新たな代替的なモデルを検討し、モデルの違いが評価結果に与える影響を把握する、あるいはこれまでの評価に用いた既存のモデルの保守性の程度を定量的に把握するための技術を開発・整備し、評価の信頼性を確認するための材料を整備していくことが必要になると考える。

モデル不確実性については、先に述べた事業や安全規制への反映の観点からも複数のモデルの存在を考慮した評価によるモデル不確実性の影響の定量的な把握に関する技術の向上が重要となる。

そこで本研究では、上記に該当するプロセスとして

- ・保守的にその効果を見逃したプロセスである掘削影響領域での移行遅延の影響
- ・簡略化されたプロセスであるガラス固化体の割れが溶解に及ぼす影響

に着目し、代替的なモデルの開発を行うとともに、影響評価の試行を通じてモデルの不確実性の影響について検討した。

(2) 研究内容

以下、(i)において掘削影響領域での移行遅延を考慮する人工バリア中核種移行解析モデルに関する検討、(ii)においてガラス固化体の割れが溶解に及ぼす影響に関する検討についてそれぞれ述べる。

(i) 掘削影響領域での移行遅延を考慮する人工バリア中核種移行解析モデルに関する検討

(a) 核種移行解析モデルの構築

第2次取りまとめのレファレンスケースにおける人工バリア中核種移行解析では、ガラスの溶解、緩衝材中の核種の移行、母岩への核種の放出を1次元円筒座標上でモデル化し、人工バリアの性能を評価した(図4.2.3-1)。

モデル化に際しては、

- ・緩衝材中での核種の濃度は、軸方向および周方向での勾配はなく、半径方向にのみ勾配を持つ。
- ・ガラス固化体から溶出した核種は瞬時にオーバーパック外側表面に達すると仮定し、上部、下部および側部を含むオーバーパックの全外側表面積から緩衝材への移行を考慮するために、解析上の仮想的な緩衝材軸方向の長さを設定する。
- ・緩衝材外側に達した核種はEDZを通過する地下水と瞬時に混合し、その全量が周辺の母岩中の亀裂に移行する。

などの、本来3次元的に移行する核種の挙動を1次元的に取扱うための簡略化と仮定が設定され、また、処分坑道掘削の影響を受けた岩盤として想定された領域である掘削影響領域に期待し得る遅延効果(緩衝材外側に達した核種の掘削影響領域内の亀裂部と基質部への分配、あるいは基質部での拡散と収着など)を保守的に考慮していない。しかしながら、これらの

仮定が結果に与える影響については、これまで詳細に確認されていなかった。

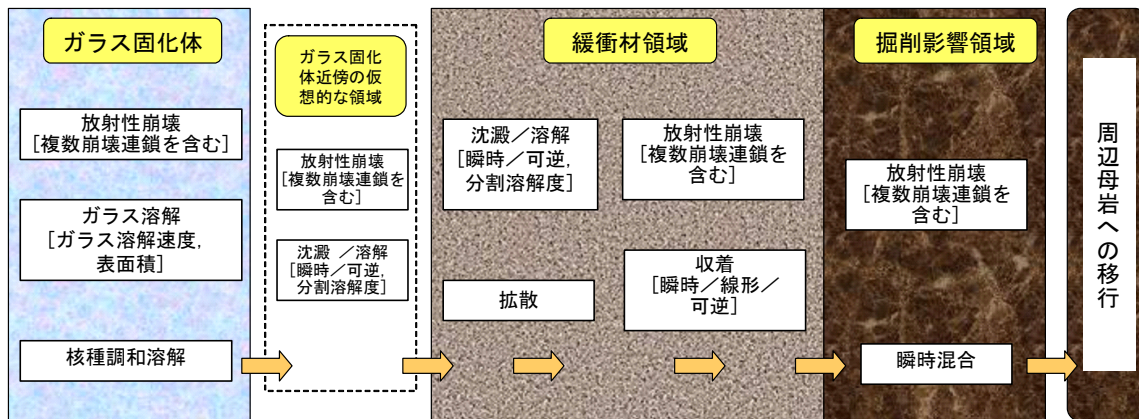


図 4.2.3-1 人工バリア中核種移行解析モデルの概念図

このような、人工バリアを1次元としてモデル化することの影響、掘削影響領域の遅延効果を考慮しないことの影響などを検討するためには、人工バリア部分および掘削影響領域部分をより現実に即して2次元あるいは3次元的にモデル化することが必要になる。

以上のことから、本検討では、レファレンスケースで考慮した人工バリア中核種移行プロセスと同じプロセスを考慮しつつ、人工バリア部分および掘削影響領域部分を2次元的に取り扱った人工バリア中核種移行解析モデルを構築する（若杉ほか，2004；核燃料サイクル開発機構，2003）。また、このモデルとレファレンスケースで用いた1次元人工バリア中核種移行モデルによる解析結果を比較し、モデル化における仮定の違いの影響を定量的に検討するとともに、レファレンスケースで用いたモデルの保守性について考察する。

2次元化における人工バリア中の核種挙動に関する概念モデル（図 4.2.3-2～図 4.2.3-4）を構築するために、以下のことを仮定した。

- ・以下の4つの領域を考慮する。

① ガラス固化体，オーバーパック

ガラス固化体中の核種は、ガラスの溶解に伴いガラス固化体近傍の仮想的な領域に溶出する。なお、ガラス固化体中での核種の移行は考慮しない。また、ガラス固化体の溶解に伴う表面積の時間的な減少は保守的に無視する。

オーバーパックの核種移行遅延効果は保守的に無視する。

② ガラス固化体近傍の仮想的な領域

ガラスの溶解をモデルとして取込むための仮想的な領域。ガラス固化体から溶出した核種は、いったんこの領域に溶出した後、緩衝材中へ移行する。なお、本領域での元素濃度が溶解度を超えた場合、沈殿が生じる。また、この領域での収着などによる遅延効果は考慮しない。

③ 緩衝材領域

核種は、収着および沈殿を伴い緩衝材中を拡散により移行し、緩衝材外側の掘削影響領域へ移行する。なお、緩衝材中での核種濃度は、周方向の勾配はなく、図 4.2-13 の軸方向および半径方向にのみ勾配を持つと仮定し、緩衝材中の核種の拡散による移行プロセスを2次元円筒座標系で表現する。

④ 掘削影響領域

以下のふたつの領域を考慮し、掘削影響領域中の核種の移行プロセスを2次元円筒座標系で表現する。

亀裂：緩衝材外側に到達した核種の一部は、そこに接する亀裂へ移行する。亀裂内に移行した核種は、基質部への拡散（マトリクス拡散）を伴い、移流により亀裂

中を移行する。なお、亀裂表面への収着は考慮しない。

基質部：緩衝材外側に到達した核種のほとんど（亀裂への移行分以外）は、そこに接する基質部へ移行する。基質部内に移行した核種は、収着を伴い基質部中を拡散により移行する。なお、基質部中での核種濃度は、周方向の勾配はなく、図 4.2.3-4 の軸方向および半径方向にのみ勾配を持つと仮定する

- ・掘削影響領域中での亀裂の想定については、掘削影響領域の中心に単一の平行平板亀裂が半径方向に存在すると仮定する（図 4.2.3-4）。ここで、亀裂の想定については、現実的には頻度や方向性を考慮することが望ましいが、それらを適切に設定することは困難であるとともにモデル化も極めて複雑になる。そのため、本検討では、上記の単純な取扱いにより掘削影響領域の遅延効果の見通しを得ることを重視することとした。
- ・評価上考え得る最も早い亀裂内流速として、廃棄体 1 本に対して算出された掘削影響領域を通過する流量が掘削影響領域内の 1 本の亀裂に流れると仮定する。なお、掘削影響領域内の亀裂中の流れは、保守的な評価とするとともにモデルの単純化の観点から、緩衝材を中心に放射状に流れると仮定する。
- ・全評価領域において、複数の崩壊連鎖を同時に考慮する。
- ・核種移行率を以下のように定義する。

① 人工バリア外側からの核種移行率

緩衝材外側を通過する単位時間あたりの核種量

② 掘削影響領域からの核種移行率

亀裂外側に達した単位時間あたりの核種量

この概念モデルに基づき、2次元人工バリア中核種移行を解析するための数学モデルを2次元円筒座標系で構築した。さらに、この数学モデルに基づき、グラフィカルユーザインターフェイス（GUI）環境で容易にモデル構築が行えるシミュレーションプラットフォーム GoldSim（Golder Associates, 2002）を用いて、解析モデルの構築および評価領域の空間メッシュの設定を行った。

なお、モデルの構築においては、緩衝材部分と掘削影響領域部分を一度に2次元化するのではなく、まず緩衝材部分のみの2次元化を行い（図 4.2.3-3）、その後2次元化した掘削影響領域部分を加える（図 4.2.3-4）という2段階で作業を行った。緩衝材部分のみの2次元化を行う場合の外側境界の取扱いは1次元モデル（図 4.2.3-2）と同様とし、緩衝材の外側に到達した核種は、掘削影響領域を通過する地下水と瞬時に混合し、掘削影響領域から周辺母岩へ移行する単位時間あたりの核種量を、人工バリア外側からの核種移行率とする。

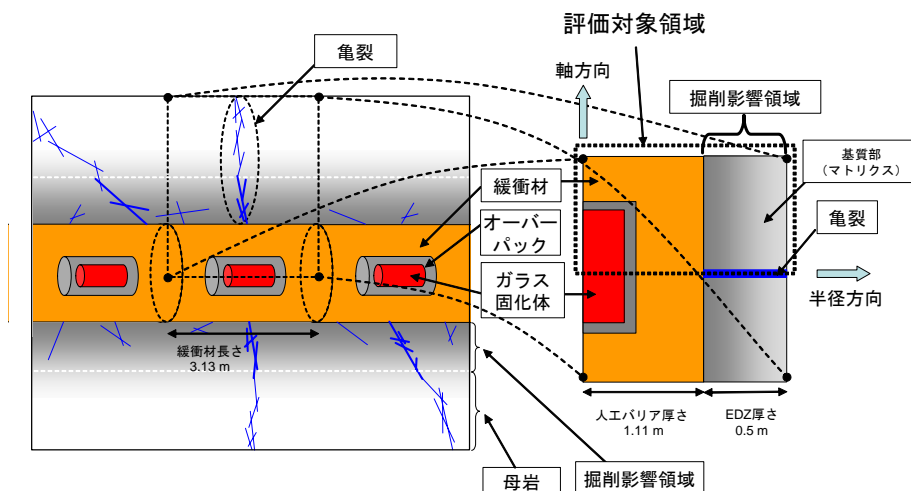


図 4.2.3-2 2次元人工バリア中核種移行モデルの幾何形状

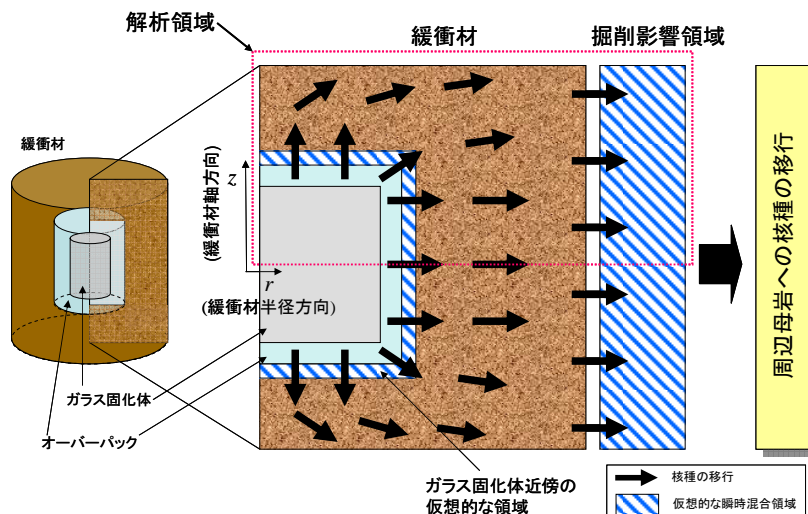


図 4.2.3-3 2次元人工バリア中核種移行モデルの概念図（緩衝材部分の2次元化）

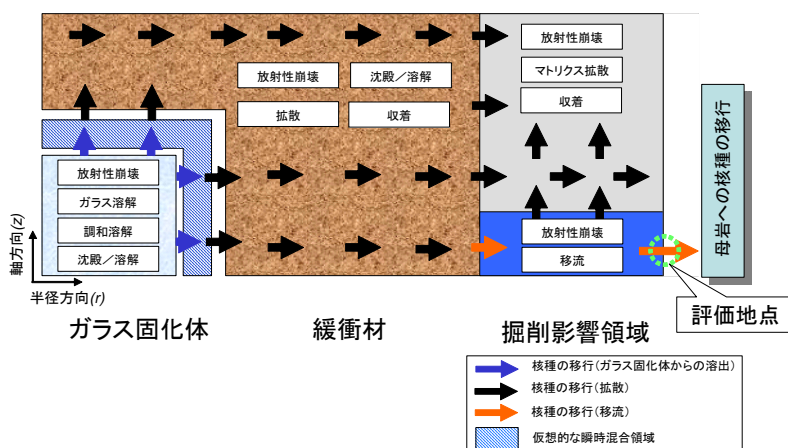


図 4.2.3-4 2次元人工バリア中核種移行モデルの概念図（緩衝材部分と掘削影響領域部分の2次元化）

(b) 解析結果と考察

(a)に示した 2次元人工バリア中核種移行モデルを用いて、核種移行率を評価した。なお、解析に用いた人工バリアの幾何形状、掘削影響領域の幾何形状および核種移行データは、第2次取りまとめのレファレンスケースに準拠し設定した。

まず、緩衝材部分のみを2次元化したモデルでの解析を実施し、1次元でモデル化したレファレンスケースの結果と比較した。その結果、多くの核種において、移行率の観点からは大きな違いを生じず、安全評価上重要な Cs-135 の1次元の結果は2次元に比べて高めになることが確認された。このことから、第2次取りまとめにおいて1次元の簡略化を採用したことの妥当性が確認された。

次に、緩衝材部分と掘削影響領域部分を2次元化したモデルでの解析を実施し、1次元でモデル化したレファレンスケースの結果と比較した。対象核種は、比較的半減期が短く、収着性の高い Pu-239、および安全評価上重要な核種のひとつである Cs-135 とし、それら核種の掘削影響領域からの移行率の経時変化を比較した。結果を図 4.2.3-5 および図 4.2.3-6 に示す。2次元モデルにおける EDZ からの移行率は、緩衝材の外側面に対して亀裂の断面積が小さいことにより亀裂に流入する核種量が少ないこと、および基質部中での収着を伴う拡散に

よる移行遅延効果により、その最大値（以下、「最大移行率」という）が、1次元のモデルと比較して、Pu-239で3桁、Cs-135で1桁低減した。

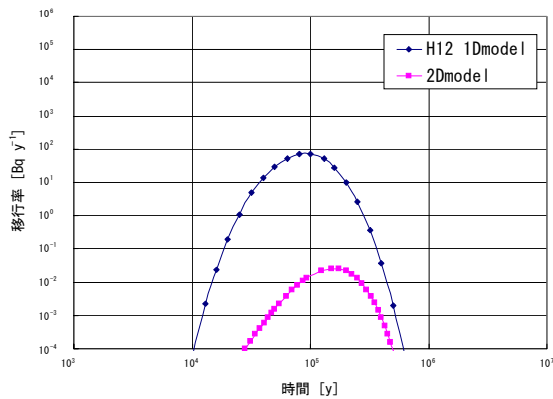


図 4.2.3-5 掘削影響領域からの移行率の経時変化 (Pu-239)

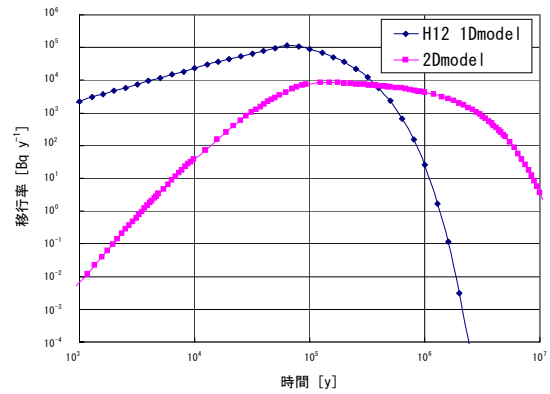


図 4.2.3-6 掘削影響領域からの移行率の経時変化 (Cs-135)

さらに、Cs-135の最大移行率が緩衝材および掘削影響領域中のどのような移行プロセスにより規定されているのかを詳細に把握するために、各地点における単位時間あたり、単位断面積あたりを通過する核種量（以下、「フラックス」という）を評価した（図 4.2.3-7）。亀裂と基質部の境界では、掘削影響領域外側近傍を除き、亀裂から基質部へのマトリクス拡散よりも、緩衝材から直接基質部に移行した核種が基質部を通過して亀裂へと移行するプロセスが顕在化し、亀裂内のフラックスが増加する要因となっている。なお、マトリクス拡散は、掘削影響領域外側近傍において生じているが、そのフラックスが小さいことから、掘削影響領域からの移行率への影響は小さいと考えられる。

このことから、Cs-135の最大移行率は、核種が緩衝材から直接亀裂へ流入するプロセスに加え、緩衝材から基質部を通過して間接的に亀裂へ移行するプロセスにより規定されていることが示唆された。

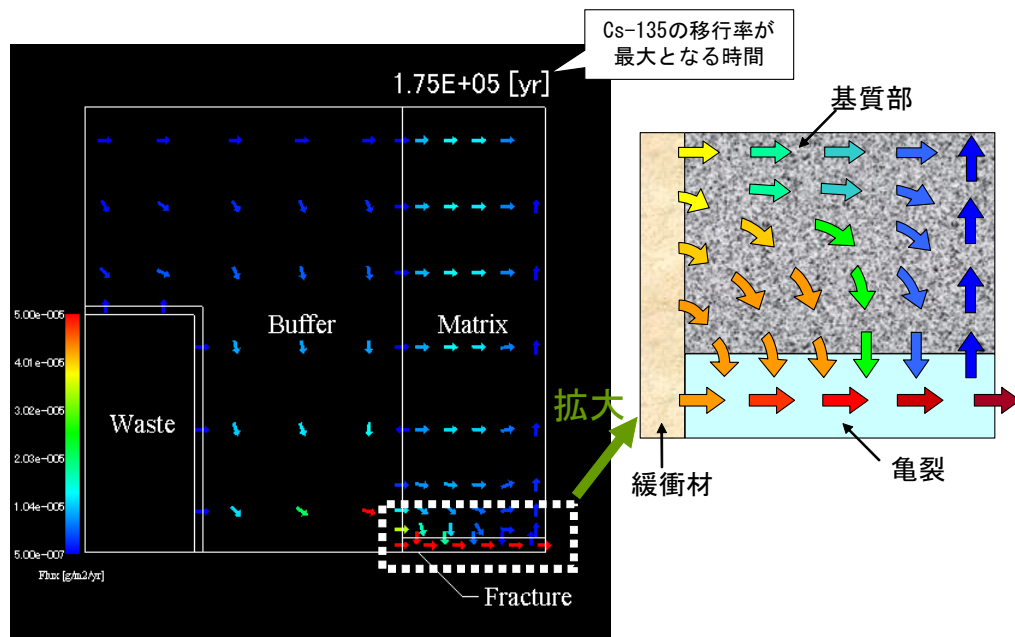


図 4.2.3-7 2次元人工バリア中核種移行モデル（緩衝材と掘削影響領域の2次元化）によるCs-135の移行率が最大となる時間での各地点におけるフラックス

さらに、掘削影響領域中の移行に影響を与える重要なパラメータを明らかにするために、Cs-135を対象に感度解析を実施した。この結果、分配係数と亀裂内流量が掘削影響領域からの最大移行率への感度が高いことが分かった。

以上の結果から、モデルの不確実性に関する検討のひとつとして行った、2次元人工バリア中核種移行解析モデルの構築と解析・考察を通じて、第2次取りまとめの安全評価における仮定のうち以下の2点について検討した。

- ・人工バリアを1次元として簡略化することの影響
- ・掘削影響領域の遅延効果を保守的に考慮しないことの影響

その結果、緩衝材部分については、1次元への簡略化の影響は小さいことを確認した。一方、掘削影響領域を2次元化しそこでの遅延効果を考慮した場合、最大移行率が減少する可能性のあることを定量的に示した。さらに、掘削影響領域からの最大移行率を規定する主要な移行プロセスについても、緩衝材から基質部への移行、およびそれに続く基質部を経由した亀裂への移行が大きく関係している可能性が示された。

(ii) ガラス固化体の割れが溶解に及ぼす影響に関する検討

(a) 核種移行解析モデルの構築

高レベル放射性廃棄物を地層処分した後のガラス固化体の溶解においては、ガラス冷却過程で生じる亀裂により溶解に寄与する表面積が増加し、ガラスの溶解が促進される可能性がある。

これまでの第2次取りまとめでの安全評価や諸外国での安全評価(たとえば, Nagra, 1994)においては、ガラス溶解に対する亀裂の影響を取込むために、保守的にガラス固化体の幾何学的表面積の10倍程度を溶解に寄与する面積とし、その面積に比例して溶解量が増加するとしている。一方、亀裂が存在する場合でも実質的な溶解量の増加はそれほど大きくないとの実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験結果も報告されており(園部・石黒, 1990)、これは亀裂により溶解に寄与する表面積が増加してもガラスの溶解がそれに比例して大きくなるわけではないことを示している。

そこで、本検討では、3.3.1項での亀裂が開いた状態を対象とした検討に対して、亀裂が閉じた状態を対象とした検討として

- ・ガラスの溶解と亀裂中の移行プロセスを組み合わせた解析モデルの構築
- ・そのモデルを用いた感度解析などの実施による、ガラスの溶解に対する亀裂の影響の把握、および第2次取りまとめで用いたガラスの溶解に関するパラメータの設定の保守性の確認
- ・実際の試験系への適用による本モデルの妥当性の確認

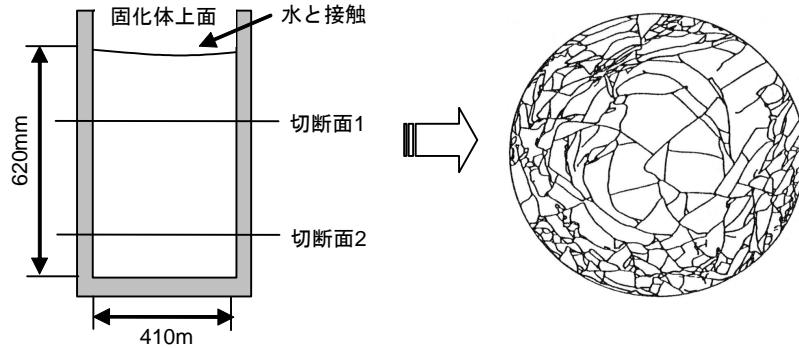
を行うこととした(蛭名・牧野, 2005)。なお、本検討では、亀裂が発生した後の状態を対象とし、亀裂の発生プロセスなどは考慮に入れていない。

図4.2.3-8に参考とした実規模模擬ガラス固化体の浸出試験(園部・石黒, 1990)での断面図を示す。また、図4.2.3-9にガラス固化体の割れが溶解に与える影響を評価するための概念モデルを示す。モデル化においては、ガラス固化体側面や上下面が断面と同様な亀裂を有すると考え、ガラス固化体が点線部分のように亀裂で囲まれた多数のブロックに分かれていると仮定した(図4.2.3-9左上)。

そのうえで、まずひとつのガラスブロックとその周辺の亀裂を対象として、Siの溶解(1次反応)と亀裂中でのSiの移行(拡散)のプロセスを取込んだ概念モデルを作成した(図4.2.3-9右上)。

この概念モデルに基づき、図4.2.3-9右下に示す1次元モデルを構築し、まずひとつのガラスブロックとその周辺の亀裂を対象にした感度解析により、亀裂発生のような条件を想定し

てそれらの影響度を調べた。そのうえで、複数のガラスブロックを含む系に相当する実規模模擬ガラス固化体を用いた試験（園部・石黒，1990）を対象に，上記モデルを適用し，モデルの妥当性および亀裂の影響度に関する感度解析からの知見が適切であるかを検討した。



①実規模模擬ガラス固化体の断面図

②ガラスブロックとその周辺の亀裂におけるSiの溶解と移行のイメージ

図 4.2.3-8 実規模模擬ガラス固化体と断面図

（ガラス固化体が水と接触していた領域は固化体の上面部分のみ（園部・石黒（1990）より抜粋））

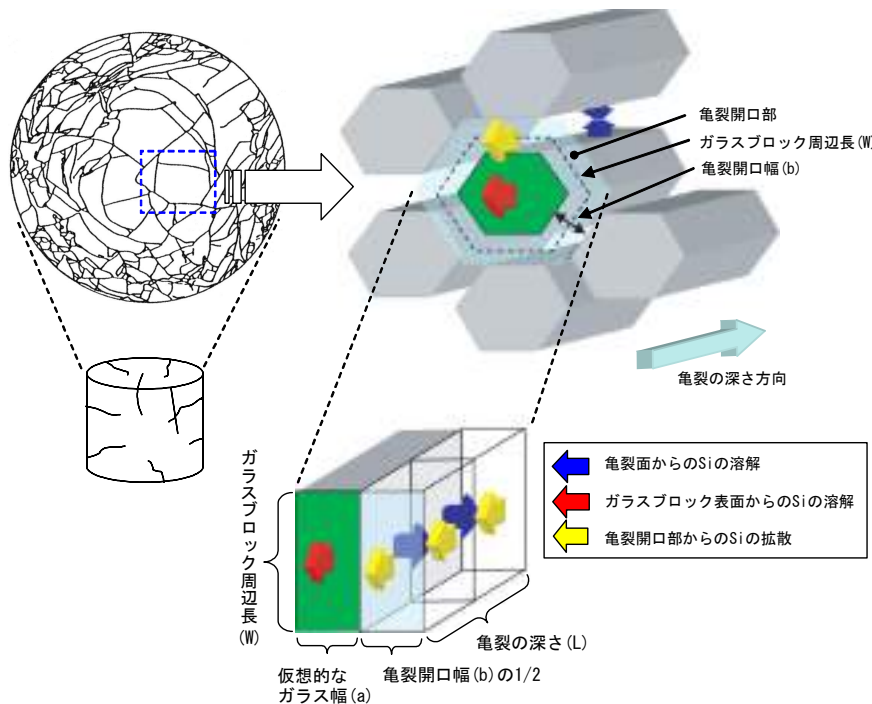


図 4.2.3-9 ガラス固化体の割れが溶解に与える影響を評価するための概念モデル

（本モデルでは，ガラスブロック表面および亀裂開口部からガラス固化体外側の領域に出てきた Si は瞬時混合領域に入るものとした）

なお，感度解析では，図 4.2.3-9 のモデルパラメータのうち，亀裂開口幅，仮想的なガラス幅および亀裂深さを変動させた。また，それらパラメータの溶解への影響を判断する指標と

して、亀裂開口部から拡散によりガラス固化体外側の領域に出てくる Si の量（これは亀裂面からの溶解と亀裂中での拡散に關係）、およびガラス固化体外側の領域に直接接するガラスブロック表面から溶解する Si の量（固化体の幾何学的表面からの溶解と關係）の比を用いた（(4.2-1)式の F 比）。

$$F \text{ 比} = \frac{\text{亀裂開口部からガラス固化体外側の領域への Si の拡散移行率}}{\text{ガラスブロック表面からガラス固化体外側の領域への Si の溶解速度}} \quad (4.2-1)$$

(b) 解析結果と考察

感度解析の結果、亀裂の発生がガラス固化体の溶解に与える影響は、固化体中に存在する亀裂面の面積（上記モデルでは、亀裂深さのパラメータで表現）の大小そのものではなく、ガラスの主成分である Si の亀裂中での拡散に關係する亀裂開口幅と、固化体外側からの溶解に關係する面積（上記モデルでは、仮想的なガラス幅のパラメータで表現）の大小に依存して変化することが示唆された。これは、亀裂が存在する場合でも実質的な溶解量の増加はそれほど大きくないとの実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験結果（園部・石黒，1990）と定性的に整合するものである。

次に、実規模模擬ガラス固化体を用いた浸出試験結果との定量的な整合性を確認するために、以下の試験条件を考慮して上記モデルを適用した。

- ・ 観測された切断面あたりの亀裂の総延長
- ・ 観測された亀裂開口幅の最大値

なお、ひとつのガラスブロックとその周辺の亀裂を対象にした図 4.2.3-9 のモデルを、複数のガラスブロックを含むなどの複雑さを有する試験条件（図 4.2.3-8）に適用するにあたっては、上記の亀裂総延長と亀裂開口幅の観測値から、図 4.2.3-9 のモデルのパラメータである仮想的なガラス幅および亀裂開口幅を近似的に求めた（蛭名・牧野，2005）。

以上の試験条件を考慮して、亀裂開口部からの拡散（亀裂面からの溶解量と亀裂中の拡散に關係）が、固化体の幾何表面からの溶解に対してどの程度の割合か（F 比）を予測すると、モデルでは約 1.0 となった。試験結果の情報を用いて同様の指標を算出すると約 0.5 であった。また、亀裂開口部からの拡散を含めた固化体全体の溶解が固化体表面のみからの溶解の何倍程度になるかを指標とすると、モデルでは約 2 倍、試験結果では約 1.5 倍となった。

モデルで予測された値は試験結果と整合的であり、本モデルの適用性および感度解析結果からの知見が適切であることが確認できたと考える。なお、モデルによる予測結果が試験結果より大きい値となっているのは、モデルにおいて実規模模擬ガラス固化体で観測された亀裂開口幅の最大値を用いているため、亀裂開口部からの拡散分を多めに評価することになったためと考えられる。

以上のことから、亀裂の発生がガラスの溶解に与える影響は亀裂面の面積そのものではなく、拡散に關係する亀裂開口幅と、固化体外側からの溶解に關係する面積（本モデル上では仮想的なガラス幅に關係）に依存して変化することをモデル的に説明することができ、ガラス固化体の溶解が亀裂による面積の増加に比例しないとする評価上の取扱いの妥当性を確認できた。

(3) 結論

第 2 次取りまとめで構築したモデルのうち、主に人工バリア中核種移行解析モデルにおいて、簡略化あるいは保守的に効果を見逃したプロセスを中心に、代替的なモデルを検討した。具体的には、掘削影響領域を含めた人工バリア中核種移行の 2 次元モデル化を通じて、掘削影響領域での核種の移行遅延により最大移行率が低下する可能性を定量的に示すとともに、

ガラス固化体の割れによる面積の増加のガラス溶解への影響に関するモデル化を通じて、割れによる面積の増加がガラス溶解に比例的に影響するわけではないというこれまでの設定の妥当性を確認した。これらの検討により、第2次取りまとめにおける評価の保守性を定量的に把握するとともに、掘削影響領域での移行遅延やガラス固化体の溶解に関する現実的な評価がシステム性能の頑健性を高める可能性を示した。

(4) 今後の課題

以上を踏まえ、今後、モデル不確実性の影響評価技術については、核種移行プロセスに関する他の研究開発課題との連携を強化しながら、以下の課題を設定し取り組んでいく予定である。

- ・室内試験などから得られた現象理解・モデルの高度化の成果を踏まえた、モデル不確実性として定量的に評価すべき不確実性要因の優先づけ、および代替的なモデルの構築やツールの開発と影響評価
- ・深地層の研究施設計画を含む実際の地質環境を対象とした調査研究から得られる地質環境の特徴および現象理解の成果などを踏まえて、それらをモデルに取込むための課題や留意点の抽出、および代替的なモデルの構築やツールの開発と影響評価
- ・上記検討を通じての、現象理解・モデルの高度化あるいは地質環境の調査・研究へのモデル不確実性の観点からのフィードバックの考え方・手法の構築、およびフィードバック事項の具体化

4.3 技術情報の統合技術

(1) はじめに

サイクル機構では、1章で述べたように、地層処分技術の信頼性向上を図っていくために、深地層の科学的研究、処分技術の信頼性向上、安全評価手法の高度化の3つの分野での研究開発を行っており、各分野は複数の調査・研究項目（以下、「研究要素」という）から構成されている。研究開発の推進のためには、このような分野の内部および分野間で研究要素が連携しつつ相互の研究成果を用いた研究の実施およびその繰り返しを効果的かつ効率的に進めていくことが重要である。

連携した研究開発の推進が重要な理由として、分野の内部の連携では、たとえば、

- ・ 深地層の科学的研究において、地質環境モデルの構築が行われるが、このためには、地質環境の調査（物理探査やボーリング調査など）で得られた調査・測定データの整理・解釈が必要となる。ここで、構築された地質環境モデルの信頼性を保つためには、調査・測定データの整理・解釈と地質環境モデルの構築との間で、適切な連携を行う必要がある。

また、分野間の連携については、たとえば、

- ・ 処分技術の信頼性向上や安全評価手法の高度化においては、深地層の科学的研究の分野で得られた調査・測定データの整理・解釈の結果や地質環境モデルなどを用いて、処分技術や安全評価の研究を実施することで、実際の地質環境への適用性の向上を図る必要がある。
- ・ 実際の地質環境への適用を通じて得られた処分技術や安全評価の知見や成果を深地層の科学的研究へフィードバックすることで、効果的な調査を行うことなどにより、全体的な技術の向上を図る必要がある。

第2次取りまとめにおいては、「地質環境条件の調査研究」、「処分技術の研究開発」および「性能評価研究」の3領域における成果の進展を相互に反映しながら、技術的な整合性と各領域間のバランスを保って進めることを重要なポイントとしてきたとしており、連携した研究の重要性が示されている。

さらに、連携した研究の重要性は、国際的にも認識されており、たとえば、SKBのサイト調査に関する報告書(SKB, 2001)、さらにOECD/NEAのAMIGOプロジェクト(Approaches and Methods for Integrating Geologic Information in the Safety Case)のワークショップ(OECD/NEA, 2004)などでも重要な課題として取り上げられている。

このような動向を踏まえたうえで、調査・測定データや研究成果およびこれらの前提条件や背景などの補足的な情報などの技術的な情報の取扱いについて、連携した研究開発の進展と関係づけて次のような整理を行った。

技術的な情報の取扱いについては、たとえば、地質環境の調査の進展を考えた場合、大量に取得される調査・測定データをデータ解釈などの別の研究要素に受け渡す必要が生じる。この際、情報の取扱い量の増加だけでなく、情報の受け渡しが必要となる研究要素の関係が増え、その関係の複雑性が増してくることが考えられる。このような状況においては、次のようなことが発生することが予想される。

- ・ 技術的な情報の共有困難

たとえば、大量の調査・測定データが取得されても、これらが整理されていない状態では、その情報を必要とする研究要素があっても容易に利用することができない。また、情報が整理されていても、それが使いやすい形で共有されていなければ同様である。これは分野内・分野間で連携した研究を進めていくうえでの障害となり得る。

- ・技術的な情報の不整合の発生

情報を受け渡す時に、たとえば、研究成果のみが受け渡され、その研究成果の目的、前提条件・制約条件あるいは処理の内容や判断などの補足的な情報を正しく把握・確認できない状況では、情報の受け渡しにより構成される研究の一連の流れの中で、技術的な情報の不整合が発生・伝播する可能性がある。

- ・情報管理の負担増大

上記のような問題に対して、研究成果およびそれと関連する補足的な情報の管理と受け渡しを個々の作業者が個別に行おうとすると、そのための負担が大きくなる。また、円滑で効果的なコミュニケーションを行うことも難しい。

今後の事業の進展および研究開発の推進にともなって、こうした問題への対応を支援することができる環境を整備することの重要性がますます増してくると考えられる。

さらに、上記で示した、技術的な情報の共有困難、不整合の発生および情報管理の負担増大といった問題に対する対応の重要性は、以下のような事業の実施主体側、安全規制側双方の資料からも読み取ることができる。

事業の実施主体側では、サイト調査・選定段階における品質管理の考え方として「この段階で重要となるのは地質統合の作業であり、特定サイトの様々な地質環境の情報がそれぞれ整合性を確保した状態で整理され、適切に文書化される必要がある」（原子力発電環境整備機構，2004）とあり、整合性の確保や情報の記録の重要性が示されている。

また、安全規制側では、「研究情報の管理のため、主要国では研究情報管理のガイドラインを設けている機関が多く見られる。我が国においてもそのようなガイドラインを整備するとともに、研究が長期にわたることを考慮して、次世代への技術・情報を確実に伝承するシステムが重要になる。」（総合資源エネルギー調査会原子力安全・保安部会，2003）とあり、技術的な情報の共有と管理のための環境を整備する必要性を読み取ることができる。

以上のことを踏まえ、技術的な情報の共有困難、不整合の発生、情報管理の負担増大といった問題に対処・支援できる環境を整備したうえで、サイクル機構における深地層の科学的研究、処分技術の信頼性向上、安全評価手法の高度化の3分野での連携した研究開発を円滑に進めていくことの支援を目指した技術開発を進めてきている。このための環境整備として、これまでに、技術的な情報を適切に登録すること、および登録した技術的な情報を効果的・効率的に共有可能とすること、および情報管理の負担低減を図ること、を実現するシステムの開発を実施してきた。このシステムを、技術情報統合システム（JGIS : JNC Geological Disposal Information Integration System）と呼んでいる。

(2) 研究内容

(i) システムの開発方針と全体像

技術情報統合システム（JGIS）の開発にあたっては、(1)で示した3つの問題点に対処するためのアプローチを図4.3-1に示すように整理した。

技術情報統合システム（JGIS）の基本システムの開発にあたって、図4.3-1に示したアプローチを、システムにより実現する以下の3つの主要な機能によって対処することとした。

- ・技術的な情報を使いやすい形で統合的に管理
- ・研究要素間での技術的な情報の整合性の確保
- ・研究要素間で技術的な情報を共有する場の提供

図4.3-2に、技術情報統合システム（JGIS）の全体像を主要な3つの機能に着目して示す。

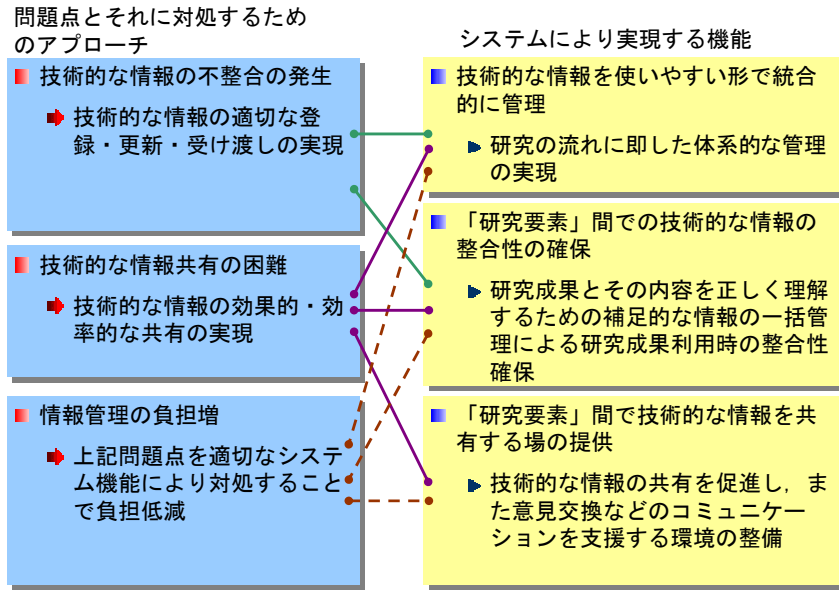


図 4.3-1 技術的な情報の取扱いに関する3つの問題点に対するアプローチと対応するシステム機能

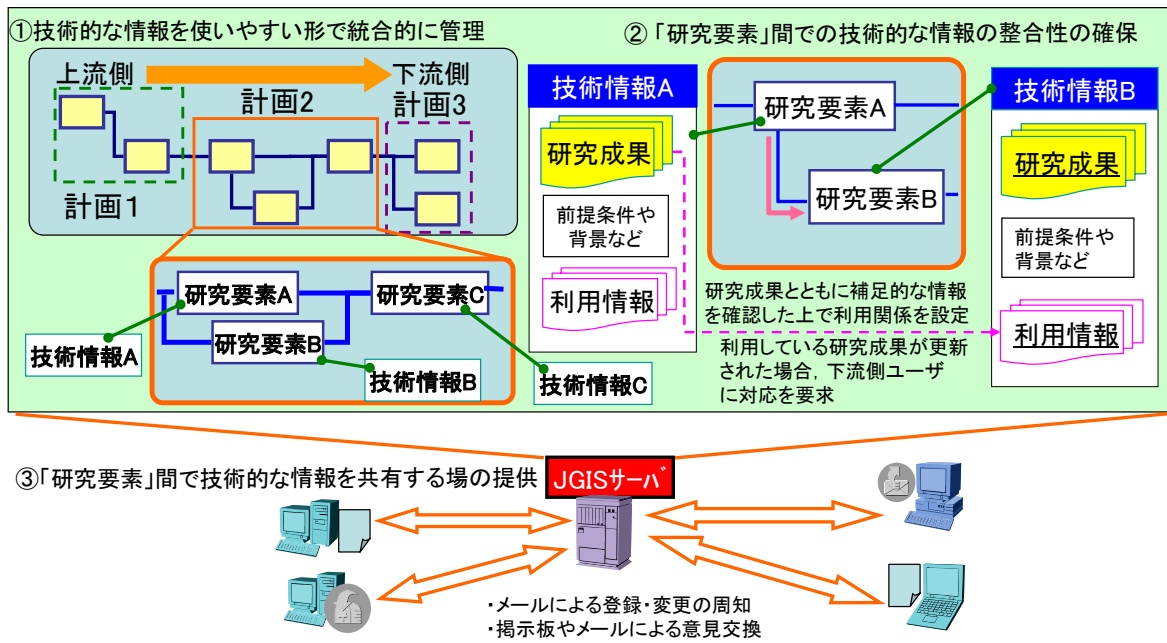


図 4.3-2 技術情報統合システム (JGIS) の全体像

(ii) システムの主要な機能

以下では、図 4.3-2 に示した、システムの主要な 3 つの機能について説明する。

(a) 技術的な情報の使いやすい形での統合的な管理

第 2 次取りまとめを含めて、技術的な情報の管理および共有については、研究プロジェクト単位で行われている場合が多い。さらに、研究プロジェクト内においても、研究要素の担当者が個別に管理を担当していることが多く、技術的な情報の共有を行う場合、担当者間で個別に受け渡しが行われている場合が多い。また、これらの管理は必ずしも体系的になっておらず、管理のレベルにも濃淡が生じる。これは、全体的に見ると技術的な情報が整理されないでばらばらに存在している状態である。こうした状態では、次のような状況が生じる可能性が高い（図 4.3-3 上段参照）。

- ・受け渡しの履歴が曖昧になりやすく、また、受け渡した情報がどこでどのように使われたのかが把握しにくい。
- ・担当者間での個別の受け渡しが中心になるため、担当者には自分に直接関係する部分以外の研究要素間の相互関係が見えにくく、全体的な研究開発の流れが把握しにくい。
- ・ある研究要素の担当者が他の研究要素の技術的な情報を利用する必要がある場合に、必要となる研究成果および補足的な情報を個別に探す必要がある。

こうした状況を改善するために、研究要素を本システムにおける技術的な情報の基本管理単位として、それら研究要素を、各研究プロジェクトでの研究の流れに基づいて結ぶことで体系化することにより、技術的な情報をその相関関係も含めて集約・統合的に扱うという考え方を導入し、システム機能として実現した（図 4.3-3）。ここで、研究要素を研究の流れに沿って結んで体系化したものを上位の管理単位とする（以下、「計画」という）。すなわち、技術的な情報は、計画に複数の研究要素が含まれるという包含関係のもとに管理される。なお、計画がどのような研究要素を含むかは、各研究プロジェクトの目標別に任意に設定することが可能であり、多数の研究要素を含む計画から数個の研究要素を含む計画まで複数作成することができる。それら複数の計画は、それぞれ独立して管理される。

ここで、研究の流れ、すなわち計画の中での研究要素間の関係としては、以下のふたつのパターンが考えられる（図 4.3-4）。

- ・計画の中での研究の大きな展開を表す研究要素の関係（たとえば、図 4.3-4 の研究要素 A → 研究要素 B）。
- ・上記の比較的大きな研究要素と、それを実施するための材料となる技術的な情報を提供する研究要素との関係（たとえば、図 4.3-4 の研究要素 b, 研究要素 b' → 研究要素 B）。

本システムでは、このような研究要素間の関係にも柔軟に対応して計画を作成できる機能としている。

これらにより、様々な関係を有する研究要素とそれに関する技術的な情報を計画というひとつの共通的なフレームで管理することが可能である。

また、研究の進展に伴って研究の流れの見直しが必要な場合には、研究要素を追加するなどして計画を修正・更新し、それをバージョンによって管理する。なお、更新前の状態も保存されており、旧バージョンの計画として参照することができる。

上記のような考え方およびシステム機能により、技術的な情報を計画という共通的なフレームのもとに統合的に管理することには、次のような利点がある（図 4.3-3 下段参照）。

- ・研究の流れを追って、目的とする技術的な情報へ効率的にたどり着くことができる。
- ・研究要素間の相関関係が明確となり、研究の全体像が把握しやすくなる。
- ・各研究要素の担当者が上流側・下流側にある研究要素を意識することができ、また、利用する・利用される関係あるいはその影響の伝播の可能性などを把握することができる。

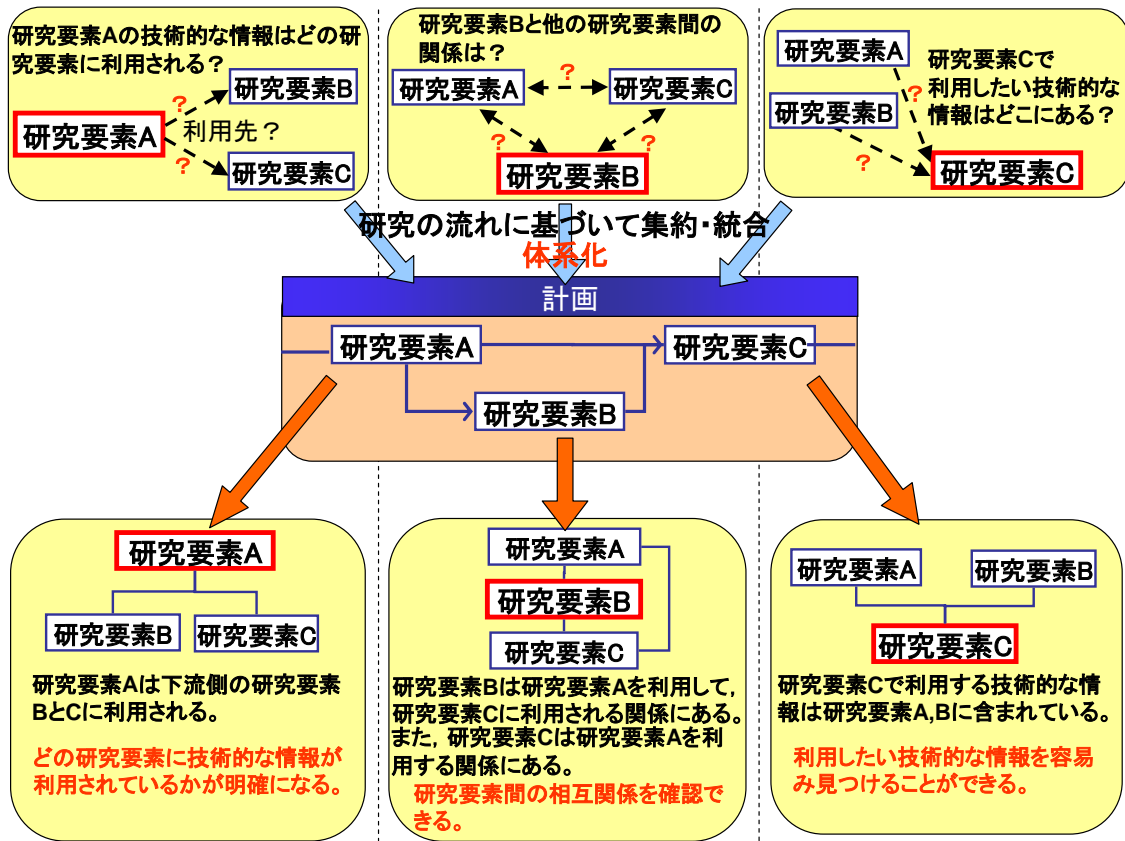


図 4.3-3 技術的な情報を集約・統合する体系化の考え方の例

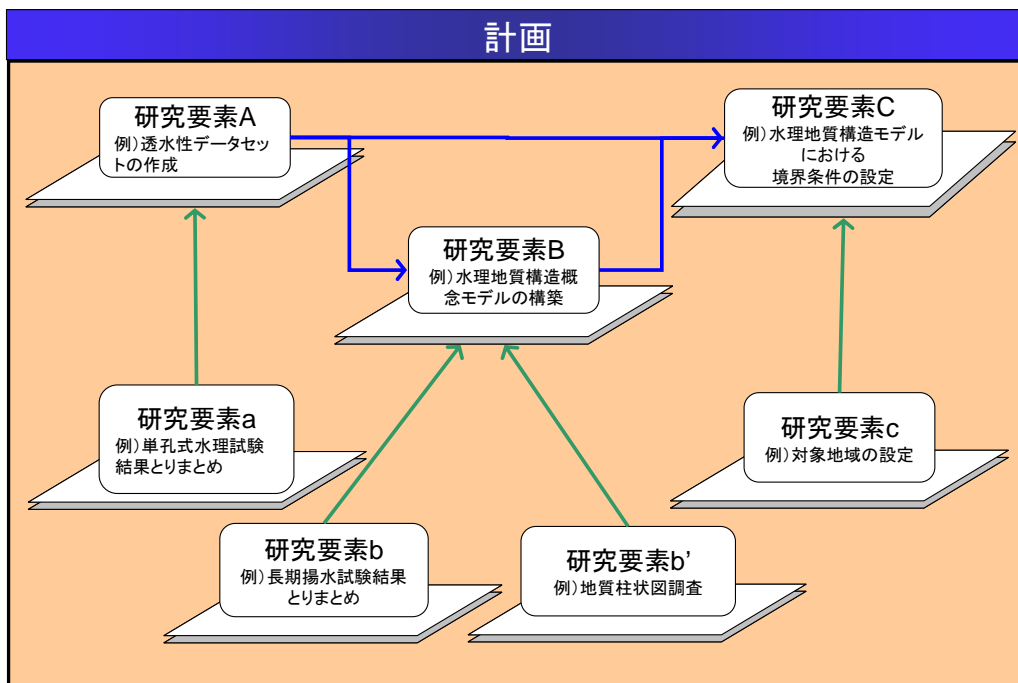


図 4.3-4 計画の中での研究要素間の関係のイメージ

(b) 研究要素間での技術的な情報の整合性の確保

計画の中の研究要素に登録される技術的な情報は、他の研究要素での研究や作業を行うあるいは研究成果を導き出すために必要な情報となる場合がある。本システムでは、たとえば研究要素 A の研究成果を研究要素 B で使用することを、技術的な情報の「利用」と呼ぶこととする。

前述のように、技術的な情報としては、まず研究要素の研究成果が挙げられる。しかし、研究成果のみを管理した場合、次のような問題が生じる可能性がある。

- ・研究成果に関する前提条件や制約条件が確認できないため、利用する側が求めている前提条件・制約条件とは異なる研究成果を利用してしまう恐れがある。このような利用が生じた場合には、不整合が発生する。また、この不整合が認識されずに、さらに下流側に利用されることにより、不整合が伝播することになる。
- ・研究成果が導き出された背景（仮定、処理内容、判断など）が不明確となり、研究成果に対する信頼性を確認することが難しくなる可能性がある。

こうした問題点に対応するためには、研究成果のみではなく、研究成果の内容を正しく理解するための補足的な情報を一括して管理することが必要となる。

このための補足的な情報として、図 4.3-5 に示すような研究目的、研究成果概要説明、前提条件・制約条件、背景情報、利用情報を研究成果とともに一括して登録し管理するものとする。

研究要素A—技術情報	
名称	研究要素A
作成者	K.Shibata
作成日	2005/01/28
研究の目的や目標を記述	研究目的
研究成果のおおまかな説明を記述	研究成果概要説明
研究成果に関する前提条件や制約条件を記述	前提条件 制約条件
研究成果が導き出された経緯・背景（仮定、処理内容、判断など）や状況の説明を記述	背景情報
利用している研究要素・研究成果の指定と利用理由を記述	利用情報
研究成果	研究成果
本研究要素の研究成果の登録は電子ファイル単位で複数可能	研究成果

利用している研究要素・研究成果名称	利用理由説明

本研究要素の研究成果名称	ファイル名

図 4.3-5 研究成果とともに一括して管理する情報

このように、研究成果とともに研究成果の内容を理解するための補足的な情報を一括して管理することで、研究成果が利用される場合でも、利用する側が利用に先立って内容を確認し、利用の妥当性を判断することが可能となる。これは、不整合の発生の防止に有効と考えられる。なお、どの研究要素の研究成果を利用したか、利用にあたってどのような判断をしたかについても利用情報として登録し管理する。この利用情報をたどることにより、ある研究要素の研究成果が下流側のどこで利用されているか、あるいはある研究要素で利用している研究成果がさらにその上流の研究成果を利用したものかどうかなどを追跡し、研究プロジェクト全体の整合性の確認を行うこともできる。

本システムでは、これら研究成果と補足的な情報および利用情報をまとめて「技術情報」と呼び、研究要素ごとにこの技術情報を登録・管理する（図 4.3-5）。

また、研究の進展にともなって、登録した研究成果が新しい内容に更新されることがある。研究成果が更新される場合、新しい研究成果とともにその内容を理解するための補足的な情報も併せて更新し、これにより技術情報のバージョンが上がることになる。ただし、技術情報のバージョンアップは、利用の関係がある場合には特別の対処が必要になる。すなわち、利用される側と利用する側のうち、利用される側の研究成果が更新されて技術情報がバージョンアップした場合、利用している側はその研究成果の更新内容を技術情報の中の背景情報などを利用して理解し、更新された研究成果を対象に利用関係を再設定する必要があるかどうかを判断する必要が生じる。更新された研究成果を利用すると判断した場合には、利用する側は、利用の結果生ずる研究成果および利用情報を更新することにより、技術情報のバージョンを上げる。これにより、利用関係のある研究要素間での技術情報の整合性を確保する。また、この研究成果の更新が利用する側には影響しないと判断した場合には、利用する側は特にこれ以上の対応は行わない。これらの対処は、ユーザの判断を要するものであり、システム側が自動で行うことはできない。そのため、(c)で述べるような機能を用いて、ユーザに判断と対処を促すようにしている。このように、研究成果が新しい内容に更新された場合、逐一利用関係の確認を行う仕組みとすることにより、技術情報の更新に対して常に整合性を確保することが可能となる。

(c) 研究要素間で技術的な情報を共通する場の提供

(a)および(b)で述べたシステム機能による情報共有、不整合を防ぐための各種情報の一括管理、および研究要素間の研究成果の利用に対する整合性確保の仕組みにより、連携した研究開発の実施を支援することが可能となると考えられる。さらにこうした機能を有効活用し、情報の共有を促進していくために、本システムでは、情報共有の場を提供することとした。情報共有の場を提供する理由としては、次のようなことが挙げられる。

- ・ある研究要素に研究成果が登録・更新されても、その下流側の研究要素の担当者が上流側の研究要素が登録・更新されたことを知るまでに時間がかかる場合、利用関係の設定がタイムリーに行われない可能性がある。
- ・また、システムが提供する情報共有や整合性確保の仕組みだけでは、双方向のコミュニケーションが十分にとれない可能性がある。

これらの理由から、まず、これまでに説明してきた機能を有効に活用するためにも、技術情報の登録や更新などといったアクションが生じたときにタイムリーに情報の登録・更新状況の確認や整合性確認の実施などの対応へとつなげていく仕組みが必要になる。こうした必要性に対応するために、研究要素への技術情報の登録・更新あるいは利用関係の設定といったアクションに対して、以下のように、システム側から自動的にアクションの発生を周知する方法を採用している。

- ・ある研究要素に技術情報が登録・更新された時、システム側より、関係する担当者宛へ電子メールによる通知を行う。また、全員が共通で閲覧できる掲示板へも同様の内容を掲載する。

- ・ある研究要素において、他の研究要素の技術情報との利用関係を新たに設定した場合、システム側よりその利用関係に関係する担当者を中心に電子メールによる通知と掲示板への掲載を行う。
- ・研究の進展にともなって技術情報が更新された場合、更新の通知メールに加えて、更新された技術情報を利用していたユーザに対しては、利用関係の見直しを指示するメールが送信される。これにより、利用関係の見直し指示を受けたユーザは、タイムリーに利用関係の見直しに関する判断と対処を行うことができる。

こうしたシステム側からの自動的な通知により、技術情報の登録や更新あるいは利用関係の設定などに対して、タイムリーに内容や整合性の確認あるいは必要な対応を行うことが可能となる。これは、研究全体を円滑に推進させることに有効であると考えられる。

また、本システムでは、登録・更新・利用関係設定などのアクションの通知メールに対して、アクションを実施した担当者へシステムを通じて質問や意見などを返信することができる。これは、技術情報の登録・更新の場合であれば、研究成果の内容や研究成果を理解するための補足的な情報に関する質問や意見を出すこと、利用関係の設定の場合であれば、利用関係やその利用理由に関して質問するなどが考えられる。こうした、質問・意見のメールはシステム側からアクションを実施した担当者へ送付され、担当者はシステムを介して回答を返信する。こうしたコミュニケーションがシステムを介することで、質問と回答のやりとりがすべて記録される。やりとりの記録は掲示板などで公開することで、研究に関する問題点や参考意見などを関係者全員が共有することが可能となる。

先述の、情報登録・更新などのアクションの自動通知によるタイムリーな情報の共有の促進に加えて、システムを介したコミュニケーション機能によって、研究全体の動向を常に意識するとともに、自分の研究成果がどのように利用されているかを直接的に知ることがことから、関係者の研究への参加意識が高まるという効果も考えられる。

(3) 結論

以下の3つの機能を中心とする技術情報統合システム（JGIS）を開発した。

- ① 技術的な情報を使いやすい形で統合的に管理する機能
「研究要素」を研究プロジェクトでの研究の流れや構造に沿って体系的に結んだものを「計画」と呼び、これを技術的な情報を共有するための共通的なフレームとして統合的に管理・共有することが可能となった。
- ② 研究要素間での技術的な情報の整合性を確保する機能
研究要素に登録する技術的な情報として、研究成果に加えて研究成果に関する前提条件・制約条件や背景情報および利用関係の情報など研究成果の内容を正しく理解するための補足的な情報を一括し「技術情報」として管理することで、研究成果の利用に対する整合性を確保することが可能となった。
- ③ 研究要素間で技術的な情報を共有する場を提供する機能
技術情報の登録・更新および利用関係の設定といったアクションが発生した時に、システム側から自動的にメールで通知することによって、登録・更新された研究成果の内容の確認などの研究のスムーズな推進に必要な対処をタイムリーに行うことが可能となった。また、意見や質問およびその回答をする場の提供は、コミュニケーションの促進と研究への参加意識の向上に役立つと考える。

これらの機能の実現によって、(1)で問題として挙げていた3つの項目に対し、それぞれ次のように対処できると考えられる。

- ・技術的な情報の不整合の発生
研究要素間での技術情報の整合性を確保する機能および情報を使用しやすい形で統合

的に管理する機能により、不整合の発生を防ぐことができる。また、これらの機能により、技術情報の履歴や利用関係の追跡性が向上する。

- ・技術的な情報の共有困難

特に、情報を使いやすい形で統合的に管理する機能により所在を明らかにすることで、情報が共有しやすくなる。また、研究成果以外の背景情報や前提条件・制約条件などを一括で管理することにより、内容の共有が容易になる。さらに、登録・更新などのアクションをシステム側から関係者に通知することにより、情報のタイムリーな共有が可能となる。

- ・情報管理の負担増大

情報管理を一元化することにより個人の情報管理の負担が減り、また 3 つの機能による支援により登録・更新・利用などの処理の効率が向上する。

これらの問題点に対処する機能を持った本システムの開発によって、連携した研究開発の実施を支援する環境を整備することができた。

事業の実施主体側のニーズとして挙げられていた、整合性の確保の重要性、また、安全規制側のニーズとして挙げられていた情報の共有促進と管理のための環境の整備などにも対応していくことができると考える。

なお、本システムは LAN および web 技術を用いることにより、作業場所を選ばずインターネットに接続されているパソコンからすべての機能が使えることを可能としており、技術的にはインターネット上に展開することも可能である。また、セキュリティの観点では、各ユーザの区別はログイン認証機能によってログイン名とパスワードにて管理しており、必要に応じて情報へのアクセス権を制限することもできる。

本システムの主要な機能の説明で示した情報の管理と利用に関する着眼点、取組み方針および、それらのシステム機能への展開は、サイトを対象とした調査・研究・評価などに関する情報管理・利用にも適用できると考えられる。また、本システムの機能は、事業の実施主体側のニーズとして挙げられていた整合性の確保の重要性、また、安全規制側のニーズとして挙げられていた情報の共有促進と管理のための環境の整備などにも対応していくことができると考える。このことから、サイト選定の実務に先立って本システムを開発したことで、情報管理・利用に関する基盤技術を整備することができたと考える。

(4) 今後の予定

今後、サイクル機構内の研究開発を対象とした本システムの段階的な運用を通じて、情報の管理と共有に関する経験とノウハウを蓄積していくことおよび、本システムの有効性をさらに向上させるためのシステム機能の改良を行うことにより、サイト選定の実務における情報の管理・利用へ反映可能な知見を継続的に蓄積していく。

なお、今後の本システムの改良点としては、

- ・本システムへの情報の登録・更新量が大幅に増えることが予想されることから、物理的に離れた場所からの本システムへのアクセスを効率化する機能の開発
- ・研究の進展にともない研究の流れの大幅な変更が必要となることも予想されることから、計画を統合・分割するなどして、研究の流れの変化に対して柔軟に対応できる機能、開発

などが考えられる。

参考文献

AECL (1994): “Environmental Impact Statement on the Concept for Disposal of Canada’s Nuclear Fuel Waste”, Atomic Energy of Canada Limited (AECL), AECL-10711, COG-93-1.

東侍郎, 柴田雅博, 油井三和, 澁谷朝紀, 能登屋信, 吉田泰 (1999): “地層処分研究開発第2次とりまとめにおける放射性元素の溶解度評価”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-071.

ベリー, マイケル J. A., リノフ, ゴードン (1999): データマイニング手法 (SAS インスティテュートジャパン, 江原淳, 佐藤栄作 共訳), 海文堂, pp.157-210.

CRWMS (2000): “Total System Performance Assessment for the Site Recommendation” Civilian Radioactive Waste Management System Management and Operating Contractor, TDR-WIS-PA-000001 Rev. 00 ICN 01.

独立行政法人産業技術総合研究所, 鳥取大学工学部, 京都大学防災研究所, 神奈川県温泉地学研究所, 山口大学理学部, 中国電力株式会社 (2005): “2004年スマトラ島西方沖の地震(M9.0)の地震波に伴う地下水位・地下水圧変化について”
<http://www.aist.go.jp/RIODB/gxwell/GSJ/database/20041226.pdf>, RIO-DB.

蛭名貴憲, 牧野仁史 (2005): “地層処分性能評価のガラス溶解評価におけるガラス固化体中の亀裂発生に伴う表面積増加の影響”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2005-006.

原子力安全委員会 (2002): “高レベル放射性廃棄物の処分の概要調査地区選定段階において考慮すべき環境要件について”.

原子力安全委員会 原子力安全総合専門部会 (2004): “放射性廃棄物処分の安全規制における共通的な重要事項について”.

原子力安全委員会 放射性廃棄物安全規制専門部会 (2000): “高レベル放射性廃棄物の処分に係る安全規制の基本的考え方について (第1次報告)”.

原子力発電環境整備機構 (2002a): “高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募について”, 2002年12月19日.

原子力発電環境整備機構 (2002b): “概要調査地区選定上の考慮事項”, 高レベル放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域の公募関係資料-3.

原子力発電環境整備機構 (2004): “高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性-「処分場の概要」の説明資料-”, 原子力発電環境整備機構, NUMO-TR-04-01.

原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会 (2000): “我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術的信頼性の評価”, 平成12年10月11日.

Golder Associates (2002): “GoldSim Contaminant Transport Module, User’s Guide”, Golder Associates Inc.

Hudson, J. (1992): Rock Engineering System: Theory and Practice, Ellis Horwood, Chichester.

核燃料サイクル開発機構 (1999): “釜石原位置試験総括報告書”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7410 99-001.

核燃料サイクル開発機構 (2002): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発-平成13年度報告-”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2002-003.

核燃料サイクル開発機構 (2003): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発－平成14年度報告－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2003-004.

核燃料サイクル開発機構 (2004): “高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発－平成15年度報告－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2004-007.

川村淳, 牧野仁史, 梅田浩司, 瀬尾俊弘, 石丸恒存, 大澤英昭 (2005): “高レベル放射性廃棄物処分における天然現象影響評価技術の高度化”, サイクル機構技報, No.28 (印刷中).

牧野仁史, 加藤藤孝, 宮原要 (2000): “天然現象の発生が地層処分システム性能に与える影響についての概略的検討－サイトを特定しない段階での検討例－”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2000-033.

Marivoet, J. (1994): “Long-term performance studies: Selection of scenarios to be considered in a performance assessment for the Mol site”, Belgian Nuclear Research Centre (SCK/CEN), R-2987.

Mckay, M. D. and Beckman, R. J. (1979): “A comparison of three methods of selecting values of input variables in the analysis of output from a computer code”, *Technometrics*, Vol. 21, pp.239-245.

Mishra, S. (2002): “Assigning Probability Distributions to Input Parameters of Performance Assessment Models”, Swedish Nuclear Fuel Waste Management Company (SKB), TR-02-11.

室淳子, 石村貞夫 (1999): Excel でやさしく学ぶ多変量解析, 東京図書, pp.124-170.

Nagra (1994): “Kristallin-I: Safety Assessment Report”, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra), NTB93-22.

Nagra (2002a): “Project Opalinus Clay, Safety Report”, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra), NTB02-05.

Nagra (2002b): “Project Opalinus Clay, FEP Management for Safety Assessment”, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (Nagra), NTB02-23.

仲島邦彦, 牧野仁史 (2005): “決定木分析を用いた核種移行解析結果の感度分析の検討”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 2005-001.

日本原子力研究所 (2004): “平成15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]”.

OECD/NEA (1991): “Review of Safety Assessment Methods”, A Report of the Performance Assessment Advisory Group of the Radioactive Waste Management Committee, Organization for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency (OECE/NEA).

OECD/NEA (1997): “Lessons Learnt from Ten Performance Assessment Studies”, Working Group on Integrated Performance Assessments of Deep Repositories, Organization for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency (OECE/NEA).

OECD/NEA (2000): “OECD/NEA International Peer Review of the Main Report of JNC’s H12 Project to Establish the Technical Basis for HLW Disposal in Japan”, Organization for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency International Review Group, NEA/WM/PEER(99)2.

OECD/NEA (2001): “Scenario Development Methods and Practice, An Evaluation Based on the NEA Workshop on Scenario Development”, May 1999, Organization for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency, Madrid, Spain.

OECD/NEA (2002): “Establishing and Communicating Confidence in the Safety of Deep Geologic Disposal”, Organization for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency (OECD/NEA), Paris, France.

OECD/NEA (2004): “AMIGO ‘Approaches and Methods for Integrating Geologic Information in the Safety Case’ First AMIGO workshop on building confidence using multiple lines of evidence”, Proceedings, Organization for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency (OECD/NEA), NEA/RWM/IGSC(2004)8, Yverdon-les-Bains, Switzerland, 3-5 June 2003.

ONDRAF/NIRAS (2001a): “The SAFIR2 report. Safety Assessment and Feasibility Interim Report 2”, National Agency for Radioactive Waste and Enriched Fissile Materials (ONDRAF/NIRAS), NIROND-2001-1.

ONDRAF/NIRAS (2001b): “Technical overview of the SAFIR2 report. Safety Assessment and Feasibility Interim Report 2”, National Agency for Radioactive Waste and Enriched Fissile Materials (ONDRAF/NIRAS), NIROND-2001-5E.

佐々木俊二, 安池慎治, 駒田広也, 小林芳正, 川村淳, 青木和弘 (1999): “釜石鉱山で観測された地震に伴う地下水圧の動的変化”, 電力中央研究所, 研究報告: U99030.

柴田雅博, 佐藤治夫, 小田治恵, 油井三和 (1999): “地層処分研究開発第 2 次とりまとめにおける緩衝材への放射性元素の分配係数の設定”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8400 99-072.

澁谷朝紀, 陶山忠宏, 柴田雅博 (1999): “性能評価で用いる岩石に対する核種の分配係数”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN8410 99-051.

SKB (1999): “SR97-Post-closure safety, Main Report Summary”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Corporation (SKB), TR-99-06.

SKB (2001): “Site investigation -Investigation methods and general execution programme”, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Corporation (SKB), TR-01-29.

総合資源エネルギー調査会 原子力安全・保安部会 (2003): “廃棄物安全小委員会報告書—高レベル放射性廃棄物処分の安全規制に係る基盤確保に向けて—”.

園部一志, 石黒勝彦 (1990): “実規模ガラス固化体の浸出試験”, 動力炉・核燃料開発事業団, PNC TN8410 90-068.

Tierney, M. S. (1990): “Constructing Probability Distributions of Uncertain Variables in Models of the Performance of the Waste Isolation Pilot Plant: The 1990 Performance Simulations”, Sandia National Laboratories, SAND90-2510.

Trauth, K. M., Guzowski, R. V. and Hora, S. C. (1994): “A Formal Expert Judgment Procedure for Performance Assessments of the Waste Isolation Pilot Plant”, Sandia National Laboratories, SAND93-2450.

US DOE (1998): “Viability Assessment of a Repository at Yucca Mountain”, U. S. Department of Energy Office of Civilian Radioactive Waste Management, DOE/RW-0508.

US DOE (2001a): “Yucca Mountain Science and Engineering Report: Technical information supporting site recommendation consideration”, U. S. Department of Energy Office of Civilian Radioactive Waste Management, DOE/RW-0539.

US DOE (2001b): “Yucca Mountain Preliminary Site Suitability Evaluation”, U. S. Department of Energy Office of Civilian Radioactive Waste Management, DOE/RW-0540.

Vieno, T. and Nordman, H. (1999): “Safety assessment of spent fuel disposal in

Hästholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara TILA-99”, Posiva Oy, Posiva 99-07.

Wakasugi, K., Webb, E. K., Makino, H., Ishihara, Y., Ijiri, Y., Sawada, A., Baba, T., Ishiguro, K. and Umeki, H. (2000): “A Trial of Probabilistic Simulation for Reference Case in the Second Progress Report on Research and Development for the Geological Disposal of HLW in Japan”, Proceedings of the 5th International Conference on Probabilistic Safety Assessment and Management (PSAM5, Osaka, 2000.11.27-12.1), Vol.4, pp.1469-1475.

若杉圭一郎, 小尾繁, 牧野仁史 (2002): “モンテカルロシミュレーションによる高レベル放射性廃棄物地層処分の安全評価に対するデータ不確実性解析”, サイクル機構技報, No14, JNC TN1340 2001-010, pp.149-160.

若杉圭一郎, 牧野仁史, 小尾繁 (2004): “核種移行解析における掘削影響領域のモデルバリエーションに関する検討”, 原子力バックエンド研究, Vol.10, No1-2, pp.21-30.

Ward, J. H. (1963): “Hierarchical Grouping to Optimize an Objective Function”, Journal of the American Statistical Association, Vol.58, pp.236-244.

山元孝広, 小玉喜三郎 (2004): “日本の地層処分で考慮すべき地質及び気候関連事象について”, 月刊地球, Vol.26, No.7, pp.452-456.

5. 安全評価手法の適用性確認

(1) はじめに

第2次取りまとめにおいては、わが国における地層処分の技術的信頼性を示す目的から、幅広い地質環境を対象としてサイトを特定しない安全評価（図5-1の上段参照）を行った。実際の地質環境を対象とした安全評価においては、実際の地質環境が有する地層の透水性などの特徴やその不均質性、対象地域が有する安全評価上重要な特徴を評価に取り込むこと、定量的データのみならず定性的データについても最大限活用すること、不均質性などに起因する不確実性を適切に評価することなどが必要となる。このため、安全評価に関する要素技術および安全評価手法を実際の地質環境に対して適用することにより、データ取得上あるいは解析上の留意点や課題を抽出し、必要に応じて調査手法や解析手法を開発・改良することとした。

上記検討の一環として、これまでに特に以下のふたつの視点から検討を進めてきた。

① 実際の地質環境を対象とするための要素技術の開発・改良

第2次取りまとめにおいて適用した幅広い地質環境を対象とした評価で用いた各種現象の理解、モデル化、パラメータ設定などに関する要素技術（図5-1の上段の各項目参照）に関して、実際の地質環境を対象とした評価の特徴となる、対象地域が有する不均質性や固有の特性などの場やプロセスに関する特徴を評価に取り込むこと、定量的データのみならず定性的データについても最大限活用すること、不均質性などに起因する不確実性を適切に評価すること、についての検討を実際の地質環境データを用いて行うとともに、実際の地質環境を対象とするために対応すべき課題を抽出し、それらの課題に対応するために必要となる要素技術の開発・改良を行う。

② 実際の地質環境を対象とした一連の評価を行うための技術の検討

第2次取りまとめにおいて適用した幅広い地質環境を対象とした一連の評価手法（モデル、パラメータおよびそのモデルチェーンとしての結合：図5-1の上段の各項目のつながり）に対して、実際の地質環境における調査・評価から物質移行評価に至る手順の検討・整備を行うとともに、実際の地質環境の特徴を評価に取り込むための技術の開発・改良を行う。

ここで、①においては、図5-1の上段の要素技術中から幅広い地質環境を対象とした評価と実際の地質環境を対象とした評価とで差異が大きいと考えられる事項および物質移行評価上の重要性が高いと考えられる事項を抽出し、優先的に検討すべき項目として天然バリア中核種移行に関する項目を中心に以下の課題を設定した（図5-1の下段参照）。

・ 地下水流動評価

第2次取りまとめにおいては、わが国における幅広い地質環境を対象としており、特定の地質環境を対象とした地下水流動解析については実施していない。

一方、処分場から地表までの移行経路およびそこでの流速や移行距離などは物質移行評価の結果に大きな影響を与えうる要因であり、対象地域の特徴を反映するものであることから、実際の地質環境を対象とする場合には、断層などを含む岩盤が有する水理特性の不均質性の特徴などを適切に考慮した地下水流動解析を実施し、物質移行評価に必要なパラメータを抽出することが課題となる。また、その際、調査段階によっては情報量が限られるため、水理および水理以外の情報を有効に活用してモデルの信頼性を高めるとともに、モデルやパラメータの不確実性を適切に評価することが課題となる。

・ 地下水水質の設定

第2次取りまとめにおいては、わが国における幅広い地質環境を対象としたため、約

15,000 件におよぶ既存地下水データの統計学的解析と深部地下水水質を支配すると考えられる一般的な地球化学的知見に基づきモデル地下水を設定しその妥当性を検討した。

地下水水質は、物質移行評価の結果に大きな影響を与えうる要因であり対象地域の特徴を反映するものであることから、実際の地質環境を対象とする場合においては、原位置での地下水水質を把握することが課題となる。そのためには、原位置での測定または地下で採水して地表で測定することになるが、全ての地下水に対し原位置で測定を行うことは実質上困難であり、大部分の地下水データは地表で測定することになるものと推定される。その場合、地表で測定された地下水データの信頼性評価や地表で測定されたデータをもとに原位置での地下水水質を推測するための補正が課題となる。

- ・物質移行の概念モデル選定およびパラメータ設定

物質移行の概念モデルの選択は、物質移行評価に大きな影響を与えるが、第 2 次取りまとめにおいては、結晶質岩、堆積岩ともに、評価の保守性を考慮して、亀裂性媒体モデルを用いて物質移行を評価した。

実際の地質環境、特に堆積岩については亀裂が卓越経路とならない場合もあり得るため、亀裂や岩石基質部の透水性などを考慮して対象地域の特徴に応じた概念モデルを設定することが課題となる。また、物質移行モデルに用いるパラメータ値をトレーサー試験に基づいて推定する場合には、トレーサー試験で生じているプロセスと物質移行評価で考慮すべきプロセスの違いや、パラメータを決めるための測定値に対するフィッティングにおける誤差などを考慮した上で、適切にパラメータ値を評価することが課題となる。

- ・分配係数の設定

第 2 次取りまとめにおいては、文献などで報告されている収着試験データを収着性の違いの観点から岩種ごとに分類して収着データベースを作成し、設定されたモデル地下水の水質と類似した条件で、適切な実験方法で取得された収着試験データをデータベースから抽出し、それらの値の分布から保守的な値を選定した。また、亀裂性媒体における亀裂表面および亀裂充填物質への収着は保守的に無視した。

実際の地質環境条件を対象とする場合は、対象地域の岩石と実際に採取された地下水（あるいは模擬地下水）を用いた収着試験を実施し分配係数を把握すること、およびその際に地質媒体の不均質性および地下水水質の不均質性や不確実性を考慮し、それらが収着特性に与える影響を考慮して分配係数の幅を設定することが課題となる。また、亀裂性媒体については、亀裂充填鉱物の収着の寄与を評価に取り入れるか否かを亀裂の観察などから適切に判断すること、およびその影響を評価に取り込むことが課題となる。

- ・コロイド、有機物の影響

第 2 次取りまとめにおいては、コロイドの影響評価にあたり、コロイド濃度およびコロイドへの核種の分配係数を、海外で実施された結晶質岩中の地下水に含まれる天然コロイドのデータに基づき設定した。

実際の地質環境を対象としてコロイドや有機物の影響評価を行う際には、これらの特性が対象地域での地下水水質や地質環境などの影響を受けやすいこと、コロイドや有機物の種類も地域により様々であることから、対象地域でボーリング孔内あるいはできるだけボーリング孔内に近い条件下で、特性評価を行うことが課題となる。

- ・シナリオ解析、不確実性評価、生物圏評価、補完的指標、技術情報の管理

天然バリア中核種移行に関する項目以外に、シナリオ評価、不確実性評価および生物圏評価においても、第 2 次取りまとめでの形式化・簡略化された取扱いに対して、実際の地質環境の特徴を反映した評価とすることが課題となる。そのための技術開発の対象としては、シナリオの不確実性の取扱い、データの不確実性の取扱い、人工バリア中核種移行の外側境界となる掘削影響領域での遅延効果の評価への取込みなどのモデルの不

確実性の取扱い，および生物圏評価結果に大きな影響を与え得るモデル化要素やパラメータの取扱いを地質環境に対する理解の程度に応じて行う技術の検討，ならびに補完的指標の検討などが考えられる。また，実際の地質環境を対象とした調査研究を支援するための技術情報の管理に係わる技術の開発も課題となる。

ここで，①として検討の対象とする課題については，地質環境の有する不均質性の程度や調査研究段階の進展に応じて，対象とする領域の特性に対する理解の程度は異なることから，各調査段階で適用する要素技術は異なるものになると考えられる。しかしながら，各調査段階で行われる調査の量やそこで得られる理解のレベルを現時点で明示的に設定できないこと，対象とする課題に応じて必要な研究開発のリードタイムが異なること，重要な課題については異なる場所（海外の地下研究施設を含む）で行う原位置試験などにおいて先行的に研究開発を行い，そこで得られた情報や知見を活用することが有効と考えられていることなどから，本章で示す①に関するこれまでの検討は，適用を想定する主たる調査段階が異なる技術を含んだものとしている。

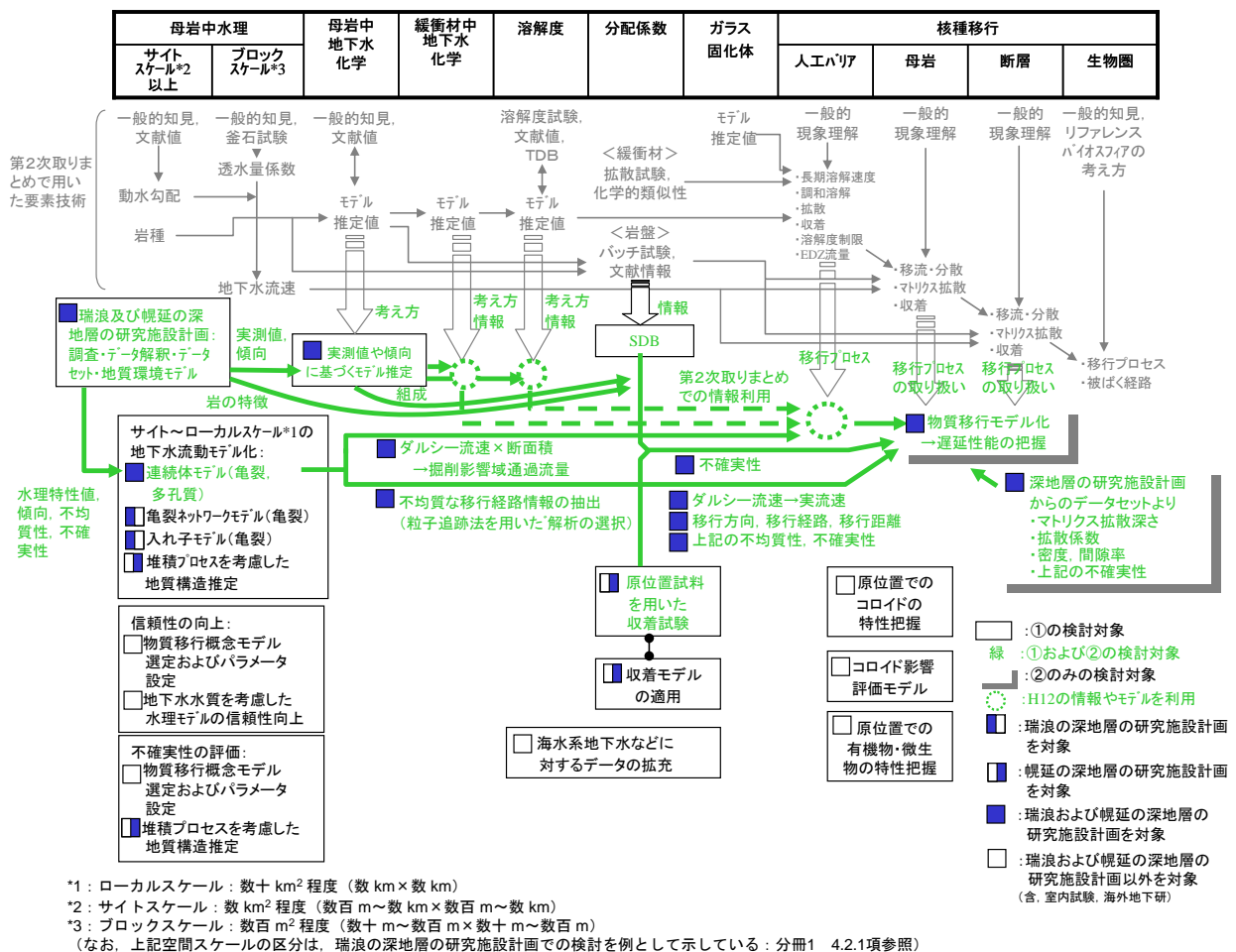


図 5-1 第2次取りまとめにおいて適用したわが国における幅広い地質環境を対象とした評価手法と実際の地質環境を対象とした検討の項目

なお，①の対象とする課題については，その多くを2～3章において基盤技術の検討として詳述しているが，本章では，2～3章の内容を，①の視点から実際の地質環境への適用に関する成果および課題や留意点として整理・補足した。

また，②については，一連の評価における整合性を確保する観点から，ある時点における地質環境に関する特徴の理解に応じた評価とすることが必要となる。そのため，現在までの

深地層の研究施設計画から得られた知見を活用し、一連の評価手順を検討することとした。このとき、現在までの深地層の研究施設計画から得られた知見に基づいて①として検討した最新の要素技術が活用できるわけではないことから、第2次取りまとめ段階での手法あるいは①の検討の中から利用可能な要素技術を採用することとした（図5-1の中段参照）。

(2) 第2次取りまとめ以降の成果と課題

(i) 実際の地質環境を対象とするための要素技術の開発・改良

(a) 地下水流動評価

第2次取りまとめにおいては、安全評価に必要な地下深部の地下水流動特性の把握に際して、幅広い地質環境での地層処分の実現可能性を提示するため、特定のサイトを対象とした地下水流動解析を行わず、簡略かつ保守的に地下水移行経路を設定するとともに、ボーリング孔内の水位データや水理特性などのデータを幅広く収集してパラメータ値を設定した。今後、実際の地質環境を対象とした安全評価を行うためには、実際の地質環境を対象とした地下水流動解析（領域規模はサイト条件により異なるが数キロメートル以上のスケール）により、人工バリアの諸要件を検討するためのデータとして処分場を通過する地下水流量の評価、天然バリア中核種移行評価のための移行経路と地下水流速の評価、生物圏評価のための地下水の流出域の特定などの安全評価に必要な情報を求める必要がある。

地下水流動評価においては、対象とする領域の地下水流動に影響を及ぼす特徴や対象岩種における水理・物質移行特性および地質学的特徴を適切に表現した水理地質構造モデルの構築が重要な課題であり、水理地質構造をどの程度詳細に表現するか、透水係数などの水理パラメータをいかに合理的かつ適切に設定するか、また構築した水理地質構造モデルの信頼性をどう確認し、地下水流動評価の不確実性をどのように評価するかが課題となる。これらを技術開発課題として整理すると以下ようになる。

- ① 実際の地質環境の特徴をより現実的に反映可能なモデルの開発
- ② 実測されたデータから水理パラメータを推定する技術の開発
- ③ 水理以外のデータを用いて水理地質構造モデルの信頼性を確認する技術の開発
- ④ 堆積岩の地質構造を推定する技術の開発（地質構造の推定における不確実性の提示）

以下に、上記の①～④の課題についての進捗状況と実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題を述べる。

① 実際の地質環境の特徴を反映可能なモデルの開発（3.1.1.1項参照）

実際の地質環境における比較的広範な領域での地下水流動および物質移行の評価を対象とした亀裂ネットワークモデルを用いたモデル化手法の整備として、地表地形などの曲面構造のモデル化機能、結晶質岩を不整合に覆う堆積岩のモデル化機能などの基本的なツールを整備した。また、詳細調査の対象となる領域においては、亀裂の地質学的、水理学的調査データなどから直接的に亀裂ネットワークモデルを用いてモデル化し、その周辺領域は亀裂ネットワークモデルの多孔質媒体近似により、数値モデルの簡素化を図る入れ子式モデル化手法など、実際の諸条件に柔軟に対応するための解析ツールの整備を行った。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

亀裂ネットワークモデルは、花崗岩などの亀裂性岩盤を対象とした地下水流動および物質移行評価において岩盤中の個々の亀裂や断層などの水理地質構造の幾何形状を直接表現したモデルである。そのため、核種移行評価上重要な移行経路となる亀裂中の地下水流速などの局所的な地下水流動特性を直接的に評価できるという利点があり、深地層の研究施設計画などで実施されてきた決定論的なモデルの補完モデルとして活用することができる。本モデル

の構築には、水みちとなる亀裂に関するデータが必要であり、瑞浪の深地層の研究施設計画で実施された流体検層のうち電気伝導度検層は(分冊1 4.2.4(4)(i)(b))は地上からの調査段階においても地下深部の水みちとなっている亀裂データを取得できる有効な手法である。今後は、同手法で検出できる水みちの透水性(透水量係数)と、評価で対象とすべき水みちの透水性の関係を整理したうえで、同手法の高精度化などの検討が望まれる。また、地上からの調査段階では、地表露頭など亀裂の長さを観測できる場所が限られており、亀裂の長さを設定するためのデータが乏しいことが予想される。このような課題に対しては、種々のスケールで観測された亀裂や断層、リニアメントなどの長さのフラクタル特性データ(たとえば、分冊1 4.2.3(3)(i)(b); Sawada et al., 2002 など)などが活用できる。さらに、実際の亀裂ネットワークは、水理的に不完全に連結し、独立したコンパートメント構造を形成する場合があることが報告されている(たとえば、Sawada et al., 2000)。この現象の安全評価への影響の定量的評価は行われていないが、地下水流速を低下させる可能性がある。この現象は、間隙水圧や地下水化学の異なる領域として捉えられる可能性があるため、間隙水圧や地下水化学の空間的变化に留意した調査を行い、それらの結果に基づいてコンパートメント構造のモデル化手法について検討する必要がある。

② 実測されたデータから水理パラメータを推定する技術の開発(3.1.1.2項参照)

堆積岩地域の地下水流動評価に必要な水理地質構造モデルの構築に関する検討の一環として、幌延の深地層の研究施設計画の地上からの調査研究段階において取得されている実際の地質環境データなどのうち、間隙水圧データを用いた地下深部の透水係数分布の推定を試みた。

高い間隙水圧の観測された稚内層中の地下水が被圧されている可能性を考慮し、稚内層とその上位の層準である声間層の上部の透水係数をそれぞれ未知パラメータとして推定した。推定の結果、既往の調査結果に比べ、透水性の低い部分の存在を示唆する結果が得られた。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

上記推定の結果、断層部分の透水性の設定(高透水性部と低透水性部からなるサンドイッチ構造、あるいは低透水性部のみの一層構造を仮定)の違いにより、上記検討において未知パラメータとした地層の透水係数に異なる傾向が見られた。本手法により、今回の断層部分の透水性のような地下水流動に重要な影響を及ぼす因子を抽出し、現地での調査にフィードバックすることなどが今後の課題と考えられる。

推定した値が実測値と矛盾する場合には、推定を行ううえで十分考慮されていない要因が存在する可能性がある。矛盾を説明可能な要因の分析・推定の試行と調査へのフィードバックを通じて、水理地質構造モデル構築における不確実性の低減に寄与することが課題と考えられる。

③ 水理以外のデータを用いて水理地質構造モデルの信頼性を確認する技術(3.1.1.2項参照)

地下水流動解析に用いられる水理地質構造モデルの妥当性確認のためのデータは、ボーリング孔などで観測された水頭値や坑道への湧水量など離散的なデータに限られる。近年は、世界的にも **multiple lines of evidence**, すなわち当該分野のデータと他の分野のデータとを整合的に説明することで概念モデルの信頼性を示すことが有効とされている(たとえば、OECD/NEA, 2002, 2004)。この考えに基づき、水理以外のデータを活用することで、構築した水理地質構造モデルの信頼性向上に資する試みとして、地下水流動解析とケモメトリックス法を組み合わせ、観測点における地下水水質の変化を、地下水の端成分の混合割合の変化により説明する手法を開発した。また、開発した手法を用いて、スウェーデンのエスポ地下研究施設の坑道掘削に伴う地下研究施設周辺の水位低下の観測データと坑道へ湧水した地下水水質の変化の観測データを用いた水理地質構造モデルの検証に関わる検討を行い、

ボーリング孔の水頭変化を再現する水理地質構造モデルが、概ね良好に地下水水質の変化も再現することを示した。また、地下水水質データは、物質移行開口幅のキャリブレーションに利用できることを示した。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

- ・調査の初期段階からのベースラインモニタリングを行うことにより、初期状態を把握し、調査などによる擾乱や変動を検出できるようにすることが重要である。
- ・モニタリングを行うパッカー区間は、水理地質構造モデル上重要な断層などを対象として選定することが重要である。
- ・実際のわが国の地質環境で、明確な地下水水質のコントラストが存在するかは明らかでないため、瑞浪や幌延の深地層の研究施設計画などで得られたデータを用いて本手法の適用性を検討する必要がある。
- ・**multiple lines of evidence** として他にも利用可能なデータとして、鉱物結晶形や鉱物組成、放射性同位体、温度などの種々のデータが考えられ、これらを総合的に活用した水理地質構造モデルの信頼性を確認する技術を向上させていく必要がある。

④ 堆積岩の地質構造を推定する技術の開発（3.1.1.4 項参照）

地上からの限られたボーリング調査から推定される地質構造には、不確実性が含まれることが考えられる。一般的に地下深部の物性値などの空間的補間に利用されている方法である地球統計法などは、ボーリング調査などでの測定データを利用する手法であり、対象地域に関する定性的な地質情報などは直接反映されていない。このため、対象地域の定量的・定性的な地質情報に基づく堆積プロセスを考慮したシミュレーションにより、客観的かつ科学的に対象地域の地質構造を推定する手法を開発することとした。本検討では、地上物理探査、ボーリング孔を利用した物理検層、岩石試料による室内試験などの結果に基づき、堆積岩の不均質性の要因である堆積環境および堆積プロセスに関する地質情報を抽出し、抽出した堆積物の構成量比などの地質情報を入力パラメータとして、堆積岩の堆積プロセスと圧密プロセスに基づき堆積岩の堆積構造を推定できる基本ソフトウェアを開発した。本ソフトウェアの利点は以下の点にあると考えられる。

- ・対象地域の堆積環境や堆積プロセスに基づいて堆積物の分布を推定するため、堆積盆スケールでの広域的な堆積物の粒度分布の傾向や堆積盆内の局所的な堆積構造の再現が可能である。シミュレーション結果は、地質学的な根拠に基づいて堆積環境などの初期条件を設定した上で計算されるため、ボーリング孔などの実際にデータが取得された地点から離れた場所についても、科学的に合理的な推定が可能である。
- ・従来の地球統計法を用いた計算結果と補完的に活用することにより、より精度の高い堆積構造の推定ができるものと期待される。
- ・堆積プロセスおよび圧密プロセスのパラメータについては、最も確からしいパラメータだけでなく、地質情報と整合した合理的な範囲でパラメータの幅を設定することができる。パラメータをその範囲内で変化させることにより、複数の堆積構造を作成することができるため、地質構造モデルを推定する際の不確実性の評価に貢献できる可能性がある。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

本ソフトウェアでは、堆積プロセスなどの現象を、実現象と同じ時間方向で再現するモデル化手法を採用している。そのため、本手法を実際の地質環境に適用する際には、入力パラメータの設定にあたって、初期条件や堆積作用に影響する要因について堆積学的な知見に基づく慎重な検討を行うことが重要である。

(b) 地下水水質の設定 (3.2 節参照)

地下水水質は、物質移行評価の結果に大きな影響を与えうる要因であり対象地域の特徴を反映するものであることから、実際の地質環境を対象とする場合においては、原位置での地下水水質を把握することが課題となる。そのためには、ボーリング孔内での測定または地下で採水して地表で測定することになるが、すべての地下水に対しボーリング孔内で測定を行うことは実質上困難であり、大部分の地下水データは地表で測定することになるものと推定される。その場合、地表で測定された地下水データの信頼性評価や地表で測定されたデータをもとに原位置での地下水水質を推測するための補正が課題となる。

このため、実際の地質環境として、堆積岩でかつ海水系地下水が存在する茂原地域や幌延地域の深部地下水を対象に、地表で測定された地下水化学データの信頼性について地下水水質の熱力学的解析や地層中に認められる鉱物などの情報に基づく補正を試行した。具体的には、茂原地域の事例において、採水に伴う水質変化の要因として溶存ガス（炭酸ガス、微量の硫化水素ガス）の遊離を仮定し、地層中に認められる水質を支配すると考えられる鉱物の情報と整合するような補正を行い地下水水質を推定した。推定された深部地下水の pH, Eh は、地表で測定された値よりも、より酸性・還元性の値になった。このことから、地表で測定されたデータをもとに深部地下水水質を推測するためには、溶存ガスの遊離による影響に対する補正が重要になることが推定された。

今後は、幌延の深地層の研究施設計画を例に地下水採水技術の向上を図り原位置における信頼性の高い pH や Eh を取得するとともに、地表で測定されたデータと原位置データとの比較をもとに採水に伴う水質変化の要因を明らかにし、原位置での地下水水質を推定するための補正手法の妥当性について検討する必要がある。また、有機物－微生物－鉱物－地下水などの複雑系での水質形成における有機的反応の寄与の水質形成モデルへの取込みについても検討を進めていく必要がある。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

すべての地下水に対しボーリング孔内で測定を行うことは実質上困難であり、大部分の地下水データは地表で測定することになる。その場合、3.2 節で述べたような地下水データの信頼性評価や地表で測定されたデータをもとに採水に伴う水質変化への影響を考慮した原位置での地下水水質を推測するための補正手法が重要である。地下水水質の熱力学的解析においては、対象となる地層中の鉱物などに関する詳細な情報（量、組成など）、解析で用いる熱力学データの信頼性も重要となる。また有機物、微生物の特性評価や水質に与える影響についても考慮する必要がある。

(c) 物質移行の概念モデル選定およびパラメータ設定

安全評価を行ううえで、移行経路をどのようにモデル化するかが重要である。第 2 次取りまとめにおいては、結晶質岩、堆積岩ともに保守性を考慮して亀裂性媒体として評価を行った。実際の堆積岩については、亀裂の発達程度や亀裂と岩石基質部の透水性のコントラストには岩種や形成年代などにより差があることから、これらの点を考慮してモデルを検討する必要がある。また、トレーサー試験結果をもとに物質移行現象に関するパラメータを設定する場合には、トレーサー試験の時間スケールと安全評価の時間スケールでのプロセスの違いを把握した上で、それを考慮したパラメータの推定が必要である。また、トレーサー試験からパラメータ値の同定を行う際の処理などに介在する不確実性についても定量化する必要がある。これらを、以下のふたつの技術開発課題として整理し、検討の進捗状況と実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題を述べる。

① 新第三紀堆積岩中の亀裂の概念モデル (3.1.3 項参照)

従来、新第三紀より形成年代が新しい堆積岩は多孔質媒体として取り扱われてきたが、第2次取りまとめにおいて、堆積岩でも亀裂が移行経路となり得ることを考慮した評価を行った。第2次取りまとめ以降、幌延の深地層の研究施設計画でのボーリング調査で得られた新第三紀堆積岩の岩石試料を用いて室内透水試験を行った結果、間隙率が相対的に高い声間層では、亀裂の有無によって透水性に大きな違いが見られなかったが、続成作用が声間層より進んでおり、間隙率が相対的に低い稚内層では、亀裂を含む場合には亀裂を含まない試料に比べて3~4オーダー高い透水性を示した。このことから、堆積岩中の水理・物質移行の評価においては、亀裂部と岩石基質部それぞれの特性を考慮したうえで、岩石全体の特徴を適切に表現したモデル化が必要と考えられる。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

実際の地質環境のモデル化にあたっては、室内試験のほかに、原位置において透水性亀裂の頻度や透水性を把握するとともに、透水性亀裂の連結性などを調査し、対象領域の水理・物質移行現象の特徴を適切に表現できるモデルを選択することが必要である。

② トレーサー試験における不確実性の検討 (3.1.2.3 項および 3.1.2.4 項参照)

亀裂中には、ガウジや脈などの充填物質が存在し、これらは高い間隙率および拡散係数を有しているため、亀裂内のチャンネルの間に充填物質が存在する場合には、充填物質を介してマトリクス拡散が生じ、亀裂表面全体からのマトリクス拡散が期待できる可能性を示した。また、短期のトレーサー試験においてはトレーサーが充填物質中に素早く拡散するため、トレーサー試験の結果を充填物質の寄与を考慮しない従来の核種移行評価モデルで解釈するとマトリクス部の拡散係数を過大評価する可能性があることを示した。このため、解釈にあたっては、充填物質の存在を考慮したモデルで行う必要がある。

また、核種移行解析コードを用いて原位置で実施されたトレーサー試験からパラメータ値の同定を行うとともに、同定したパラメータ値の信頼性を評価する手法を開発した。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

亀裂の内部構造の概念モデルが重要となるので、レジンを注入・固化などを施して充填物質の流出を防止してサンプリングし、亀裂内部構造を調査する必要がある。現在までの検討では結晶質岩中の亀裂を対象としたが、堆積岩中の亀裂のモデル化については今後の課題である。

また、地下研究施設などで実施された原位置試験データからパラメータ値を評価する際には、原位置試験データそのものの不確実性や試験データを解釈する際に用いるモデルの自由度が増えることに起因した不確実性を適切に評価する必要がある。

(d) 分配係数の設定 (3.3.3 項参照)

分配係数は、収着媒体と溶液条件に影響されることから、実際の地質環境を対象とした設定においては、対象とする岩石と地下水水質などの地下環境をいかに正確に把握するかが重要である。また、それらに対して想定される不均質性および不確実性の情報が必要となる。したがって、(b)項に示した地下水水質の設定や(e)項に示す収着挙動に影響を及ぼす有機物の測定技術などに強く依存することとなる。さらに、把握された地下環境を再現した条件で収着データを取得する試験技術あるいはその条件での分配係数をモデルなどを用いて推定する技術が必要となる。

実際の地質環境を対象とした分配係数測定として、幌延の深地層の研究施設計画から採取した岩石と地下水を用いた Cs, Se の収着試験を実施した。この際、固相試料については、サンプリング後の酸化を防ぎ、雰囲気制御グローブボックスに持ち込んだ。地下水については、地上に汲み上げたもの（以下、「実地下水」という）を用いたが、収着試験開始前に水素による還元を行い、可能な限り原位置での状態を再現するよう留意した。また、実地下水と併せて、主要成分をそれとほぼ同一組成に試薬により調製した模擬地下水を用いた試験を行いその結果を比較した。その結果、Cs, Se についてそれぞれ以下の知見が得られた。

- ・ Cs については、イライトを収着媒体としたイオン交換モデルにより、収着試験の結果をほぼ説明可能であることが示された。このことから、評価対象として与えられる岩石中のイライト含有量や地下水水質の変動範囲が特定されれば、このモデルを用いて分配係数の変動範囲を推定することが可能となった。
- ・ 一方、Se については、実地下水と模擬地下水で異なる収着挙動を示し、地下水中に存在する天然有機物が Se の酸化還元状態に影響を及ぼすことを介して収着挙動に影響を与えていることが示唆された。このことから、分配係数の取得試験にあたっては、それぞれの元素の特性を考慮して、収着に影響を及ぼす環境因子を適切に制御することの重要性が改めて認識された。また、既存の収着データベース（2.2 節参照）を利用した分配係数の推定を行う際にも同様に、評価対象とする環境条件と実験条件の差異を適切に把握し推定に反映することの必要性が改めて示された。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

上述のように原位置における地下水水質を把握することが重要であり、特に pH, Eh, 炭酸濃度などは核種の溶存状態に影響を及ぼすため重要である。そのため、すべての評価対象元素に対し、原位置における環境条件の不均質性や不確実性を考慮して、原位置の状態を模擬した条件で収着試験を実施し分配係数を得ることが理想的である。しかしながら、そのような理想的な条件で収着データを取得することには限界があり、収着データベースから得られる情報をもとに、収着データの試験条件と実際の地質環境条件との差異を踏まえて、実際の環境条件に対する分配係数を推定する作業を行うことが一般的である。この際、元素間の化学的性質の類似性などを利用することや、収着モデルを構築し、分配係数をモデルにより推定することも有効な手法となる。さらに、環境条件の不均質性や不確実性を考慮して、地下水水質の幅や鉱物組成の幅を収着モデルの入力条件として分配係数の幅を推定することや、推定手法の不確実性に起因する分配係数の不確実性についての議論が重要となる。試験条件と実際の地質環境での条件の違いのひとつとして、粉碎した岩を用いた収着試験結果を固結した岩石に適用することの妥当性について検討することも重要であり課題である。

(e) コロイド、有機物の影響（3.4 節参照）

地下水中にコロイドや有機物が存在する場合、核種がこれらとともに移行することにより母岩への収着やマトリクス拡散などの移行遅延効果が減少し、その結果、核種の移行が促進される可能性がある。コロイドや有機物の影響評価を行う際、それらの地下水中における濃度、安定性、移行性、核種収着性・錯形成能およびそれらの不可逆性という 5 つの特性を評価する必要があるが、これらの特性が各地点の地下水水質や地質環境などの影響を受けやすいこと、コロイドや有機物の種類も各地点により様々であることから、ボーリング孔内あるいはできるだけボーリング孔内に近い条件下で特性評価を行うことが重要である。

コロイドの濃度については、ろ過と濃度測定方法を組み合わせた手法を適用し、地下水中のコロイドの成分、濃度および粒径分布の評価を行った。既存の旧鉱山のアクセス坑道を利用して地下水を採取し、孔径の異なるフィルタを用いてこれを分画処理して、ろ液中の成分濃度を ICP-MS, TOC 計などを用いて測定した。地下水中には、Mg, Al, Si, Ca および有機物が、コロイドとして定義される 1.5~800 nm の粒径範囲で検出され、これらを成分とす

る無機コロイドおよび有機コロイドが存在することが認められた。このように、本手法を適用して、実際の地下水中のコロイドの成分、濃度および粒径分布を測定することができた。また、核種のコロイドへの収脱着速度を考慮できる核種移行計算コード COLFRAC-MRL を用いて、グリムゼル岩盤試験場で行われたコロイド共存下での原位置核種移行試験（CRR）プロジェクトの試験結果を解析した。解析では、核種が地下水中に存在するコロイドに収着するとした。その結果、収脱着速度を考慮した解析結果は、考慮しなかった場合に比べて、CRR 試験で得られた A_m の移行挙動に良く一致した。このような技術により、コロイドの影響が顕在化する条件を具体的に検討することができるようになった。

一方、有機物の濃度については、標準的な手法を適用して、地下水中の有機物の分析を行った。具体的には、新第三紀堆積岩地域（千葉県茂原ガス田地域）のボーリング（深度 742~1,302 m）から自噴する地下水を採取し、孔径 0.45 μm メンブランフィルターでろ過した後、ろ液中の TOC、フミン酸、フルボ酸および他のカルボン酸類の濃度を測定した。測定手法は、JIS や学会が推奨する標準的な手法を用いた。本手法によって、地下水中の TOC および主な有機酸濃度を測定することが可能であった。今後は、幌延の深地層の研究施設計画で採取した地下水を対象に、適用性が確認された濃度評価手法を用いて有機物の分析を行い、特性評価事例調査データを拡充する。

実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題

地下水中のコロイドの特性は、地下水流速などの物理的条件や、pH や Eh などの化学的条件の影響を受けやすい。したがって、地下深部の地下水中のコロイド特性を正確に評価するためには、できるだけ地下深部の環境を乱さずに地下水を採取する必要がある。今後は、擾乱の小さい原位置地下水の採取手法を開発するとともに、採取手法とコロイド特性評価手法を組み合わせ、地下深部における地下水中の天然コロイドの特性評価事例調査データを拡充する。また、モデルを用いてコロイド共存下での核種移行挙動を評価する場合、コロイドの濃度、核種収着性およびその不可逆性が、評価結果に大きく影響することから、これらの特性に関する信頼性の高いデータが必要である。さらに、コロイドのフィルター効果も、コロイドの移行挙動に大きな影響を及ぼす因子の一つである。COLFRAC-MRL では、一定割合のコロイドがフィルター効果によりろ過されることを仮定することが可能であるが、実際の評価対象となる移行経路を把握した際に、その移行経路の微視的構造を考慮してコロイドのフィルター効果をどのように評価しモデル化していくかは今後の課題である。

一方、有機物の場合も、コロイドレベルの大きさを持つ有機物が存在する可能性もあるため、コロイドの場合と同様、擾乱の小さい手法で地下水を採取する必要がある。また、掘削水中に有機物のトレーサーが含まれる場合、測定手法によっては天然有機物の濃度評価の際に影響を及ぼす可能性があるため、天然有機物との識別が可能なトレーサーを用いるか、評価前にこれらの分離を行うなどの配慮が必要である。

(f) シナリオ解析、不確実性評価、生物圏評価、補完的指標、技術情報の管理（4.1 節、4.2 節、3.5 節および 4.3 節参照）

(a)~(e)に示した天然バリア中核種移行に係わる項目以外に、シナリオ、不確実性評価、生物圏評価、補完的指標および技術情報の管理についても、実際の地質環境への適用に留意した検討を行っている。ただし、現在までは、適用の実施そのものではなく、適用に向けて各項目で対応しておくべき課題を具体化するとともに、それに対応できる手法の構築などの基盤技術を中心に検討してきた。以下では、3~4 章で述べた関連する成果を、実際の地質環境を対象とする際の観点で整理するとともに、実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題を整理した。

シナリオ解析では、地質環境の理解の程度が浅い段階においては地質環境条件などを一義

的に定めることができないことが想定され、そのような場合には複数の地質環境条件のそれぞれに対してシナリオを設定し、不確実性として評価できるようにしておくことが必要となる。4.1.1 項で示したシナリオ解析手法では、この課題に対応できるように、相関関係マトリクスにおいて複数の状態の特性 FEP を考慮し、地質環境条件に応じた FEP のスクリーニングができるようにしている。実際の地質環境を対象とした場合の適用性を向上させていくためには、深地層の研究施設計画から得られる成果などを活用したシナリオ作成の試行を積み重ねる必要がある。

天然現象影響評価については、想定される天然現象の発生とその影響を整理し、その特徴を影響評価に取り込み現実性のある評価にしていくこと、および可能性のあるシナリオを不確実性として具体化することが重要となる。この課題については、4.1.2 項において一般性のある作業フレームを構築するとともに、それを火山活動に適用することなどにより有効性を確認している。ただし、現在までの検討は特定の地域を対象とした検討ではないため、実際の地質環境を対象とする場合には、対象地域の状況に応じた天然現象に関する調査技術などの検討と合わせて、作業フレームを部分的に詳細化するなどの見直しが必要になると考えられる。

不確実性評価では、まずデータの不確実性について、実際の地質環境の特徴や理解の程度に応じた不確実性をパラメータの分布設定に反映する技術、そのパラメータの分布を核種移行評価に取り込み影響を定量化する技術、およびその影響を分析することにより重要な不確実性を抽出し調査研究に反映していく技術が必要となる。この課題に対して、4.2.1 項で示したように、実際の地質環境を対象としてパラメータの分布を設定する方法の検討と試行を通じて、パラメータ設定上重要となる情報を識別し共有することの重要性などの実施上の留意点を示した。影響の定量化と分析については、4.2.2 項で示したように、核種移行解析モデルについてモンテカルロシミュレーションを行う技術を整備するとともに、その結果を分析し重要パラメータを抽出する技術を提示した。これらについては、(a)～(e)に示した天然バリア中核種移行に係わる項目を含めて、実際の地質環境に対する検討において常に不確実性の具体化を意識することにより、個々の項目に関する検討と不確実性評価の連携を強化・拡大し、かつ効果的なフィードバックをしていくことが必要になる。また、人工バリア中核種移行に関するモデルの不確実性として、実際の地質環境において掘削影響領域に関する理解が深まり、そこでの遅延効果の取り込みが可能になった場合の評価技術の準備の一環として、4.2.3 項において掘削影響領域の遅延効果を考慮した人工バリア中核種モデルの構築と解析を行い、掘削影響領域に期待される遅延効果に対して定量的な知見を示した。これについては、たとえば深地層の研究施設計画での地下施設での調査研究段階（第 3 段階）における調査研究において、掘削影響領域に関する理解の程度に応じた遅延機能の取込みに関する詳細な検討が必要になると考えられる。

生物圏評価では、実際の地質環境および地表環境での主要な特徴を反映するための評価技術の準備の一環として、3.5 節において、生物圏評価モデルに取り込むことのできる地表要素やプロセスを拡充するとともに、地表での希釈効果などと密接に関係する GBI の設定について、調査などで得られる情報に応じてどの程度の GBI 候補の絞り込みが可能となるかについて概念的な検討を行い、広域の地下水流動と合わせて表層の地下水流動についての理解の程度が GBI 候補の絞り込みの重要な要因のひとつになることを示した。また、核種ごとに百を超える評価パラメータの中から重要なパラメータを抽出し、さらにそれらのパラメータの現時点における信頼性はどの程度か、サイト固有か、わが国固有か、あるいは一般的なものかなどを整理することにより、今後対象とする地域が明らかとなった場合のパラメータ取得の必要性や優先度を概略的に検討できるようにした。実際の地質環境および地表環境を対象とした場合の適用性を向上させていくためには、深地層の研究施設計画から得られる成果などを活用したモデルの適用や GBI 設定の試行を積み重ねる必要がある。

補完的指標については、線量やリスク以外の安全指標として利用される可能性のある天然放射性核種の濃度やフラックスに関して、今後の検討に向けての基盤整備としてわが国での情報を収集・整理するとともに、核種濃度やフラックスを指標として用いる際の算出方法を例示した（3.5 節参照）。

技術情報の管理では、実際の地質環境を対象とした調査・研究が行われる際の技術的な情報（研究成果、およびその内容を理解するための情報：以下、「技術情報」という）の増大および複雑化に適切に対応するとともに、個々の調査研究間での技術情報の受け渡しを効率的に実施できるようにすることが必要となる。4.3 節で示した技術情報統合システムは、この課題に対して、調査・研究の体系に沿った技術情報の管理を中心としており、たとえば地質環境の調査・評価で用いられる統合化データフロー（たとえば、分冊 1 4.2 節参照）と整合した体系で技術情報の管理および受け渡しを行うことができる。実際の地質環境を対象とした場合の適用性を向上させていくためには、深地層の研究施設計画から得られる成果の管理・利用などへの適用を積み重ねる必要がある。

(ii) 実際の地質環境を対象とした物質移行解析に関する技術基盤の成果と課題

実際の地質環境を対象とした物質移行解析を行うためには、実際の地質環境で取得された情報を用いた地質構造モデルや水理地質構造モデルなどの地質環境モデルを構築し、それに基づく地下水流動解析を実施して地下水流動を推定するとともに、物質移行現象に関する理解を踏まえて、対象とする地質環境での物質移行を表現するモデルを構築することが必要になる。また、実際の地質環境の調査結果、地質環境モデルの構築結果および地下水流動解析結果（以下、「地質環境情報」という）に基づき、物質移行に関係する地質環境の特性（地下水化学、岩石の物理化学特性など）を整理したうえで物質移行解析で用いるパラメータ（地下水流速、地下水移行距離、分配係数、溶解度、拡散係数など）を設定することが必要になる。

これらの作業は、地質環境の調査・評価側と物質移行解析側で独立に行うべきものではなく、地質環境情報に含まれる情報（特に対象とする地質環境の特徴や不均質性を表す情報）や知見（たとえば、地質環境モデルの構築に用いたデータの解釈や判断の根拠、不確実性の情報）を物質移行モデルの構築やパラメータ設定に適切に受け渡し反映するとともに、整合性を確保することが重要である。このため、これらの作業を連続性のある一連の作業の枠組みとして具体化することが必要となる。このような枠組みにより以下のことが期待される。

- ・それぞれの作業の結果の下流側作業への受け渡しの状況を把握し評価できること。
- ・一連の作業を調査研究の進展に応じて繰り返すことにより、各作業の結果や物質移行解析の結果に含まれる不確実性の伝播や変化を具体的に把握し評価できること。
- ・その時点における地質環境の特徴の理解の程度や不確実性と対比させながら、不確実性の効率的な低減のための調査内容や解析評価の手法などの最適化のための課題を明らかにできること。

以上のことから、実際の地質環境を対象とした物質移行解析に関する技術基盤の検討として、ふたつの深地層の研究施設計画の地上からの調査段階のうち平成 17 年 3 月末までの調査・評価から得られた地質環境情報を活用して、一連の作業の枠組みに関する検討を行うこととした（図 5-1 参照）。具体的には、図 5-2 に示す概略の作業フローを構築するとともに、作業フローの個々の要素において実施すべき作業内容の具体化、要素間で相互に情報の受け渡しや協働した作業を行うべき内容の具体化、さらには作業を実施するうえでの留意点などを把握することを目的とした検討を進めた（牧野ほか、2005）。

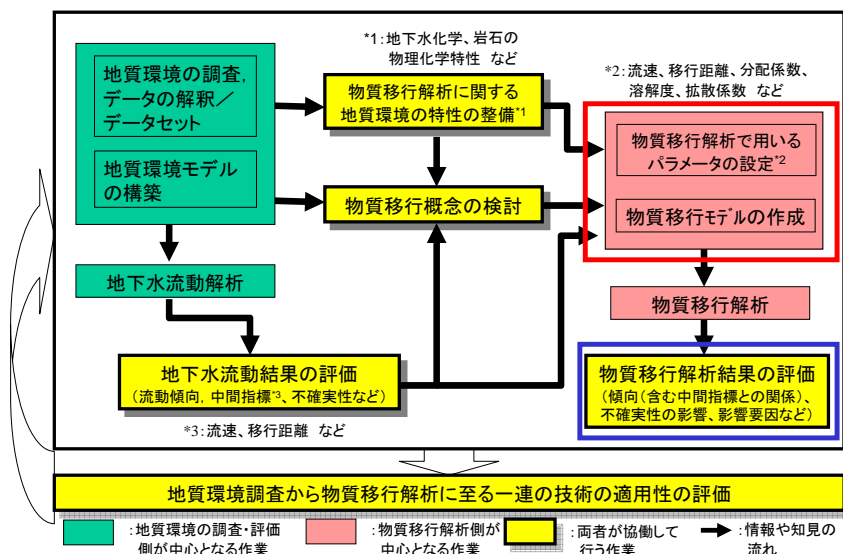


図 5-2 地質環境モデルの作成から物質移行解析までの一連の作業に関する概略の作業フロー

なお、本検討で活用する地質環境情報としては以下のものを対象とした。

- ・ 瑞浪の深地層の研究施設計画などから得られた地質環境情報
「地上からの調査研究段階（第 1 段階）」における「ボーリング孔を利用した調査・解析」までの結果（たとえば、分冊 1 4.2 節；太田ほか，2005）。
- ・ 幌延の深地層の研究施設計画から得られた地質環境情報
「地上からの調査研究段階（第 1 段階）」における「ボーリング孔を利用した調査・解析」までの結果（たとえば、分冊 1 4.3 節）。

また、実際の地質環境を対象とした物質移行解析に関する検討を進めるためには、物質移行の起点となる深度を定める必要があるため、瑞浪の深地層の研究施設計画などから得られた地質環境情報を活用する検討では深度を 1,000 m 付近に、幌延の深地層の研究施設計画から得られた地質環境情報を活用する検討では深度を 450 m 付近に仮定した。

以下では、これら検討の現状について、まず(a)において、図 5-2 に示した概略の作業フローの内容、個々の要素において実施する作業内容および要素間での情報の受け渡しについて概説する。そのうえで、物質移行解析への地質環境の特徴の反映および地質環境モデルとの整合性の確保に関する検討として、実際の地質環境を対象とした物質移行解析を行ううえでの大きな特徴であり、幅広い地質環境を対象とした第 2 次取りまとめでは簡便な取扱いとしていた、図 5-1 中に赤枠で示した「物質移行モデルの作成」および「物質移行解析で用いるパラメータの設定」の部分について、それぞれ(b)および(c)において実際の地質環境を対象とした場合のモデル化の考え方およびパラメータ設定の考え方などを例示する。また、(d)において、図 5-1 中に青枠で示した「物質移行解析結果の評価」の部分について、特に実際の地質環境を対象とした場合の不確実性の低減に着目して検討する。

(a) 作業フローの個々の要素において実施する作業内容および要素間での情報の受け渡し

図 5-2 に示した概略の作業フローでは、地質環境モデルの作成から物質移行解析までの一連の作業を大きく 11 の個別作業に分割した。さらに、それらの個別作業を

- ・ 主に地質環境の調査・評価側が中心となる作業（図 5-2 中の緑部分）
地質環境の調査、データの解釈とデータセットの整備、地質環境モデルの構築、地下水流動解析（分冊 1 4.2.4 (4)および 4.3.3 (4)参照）
- ・ 主に物質移行解析側が中心となる作業（図 5-2 中のピンク部分）
物質移行モデルの作成、物質移行解析で用いるパラメータの設定、物質移行解析
- ・ 上記の 2 者が協働して行う作業（図 5-2 中の黄色部分）
物質移行解析に関する地質環境の特性の整備、物質移行概念の検討、地下水流動解析結果の評価、物質移行解析結果の評価、一連の技術の適用性の評価

に類別した。なお、協働して行う作業については、一連の作業を連続性と整合性を確保しながら実施することが必要であるため、主に地質環境の調査・評価側が中心となる作業と主に物質移行解析側が中心となる作業の間をつなぐための作業が特に重要になるとの認識から、両者が密接に協力して実施すべき作業を明確にするために他のふたつの作業と区別している。

主に地質環境の調査・評価側が中心となる作業では以下の作業を行う。

- ・ 「地質環境の調査」において、地質環境の概念の作成・更新、調査計画の策定、地質環境の調査を行い、データを取得する
- ・ 「データの解釈とデータセットの整備」において、取得されたデータを解釈し地質構造、水理特性、地下水の地球化学特性、岩盤力学および物質移行特性のデータセットとして整備する。
- ・ これらデータセットに基づき、「地質環境モデルの構築」において、地質構造モデル（たとえば、図 5-3）、水理地質構造モデル（たとえば、図 5-4）を構築し、「地下水流動解析」の数値モデルの構築、解析ケースの設定および解析を行う。地球化学や岩盤力学についても地球化学モデルおよび岩盤力学モデルを構築し、物質移行解析に関する地質環

境の特性の整備に用いる情報とする。

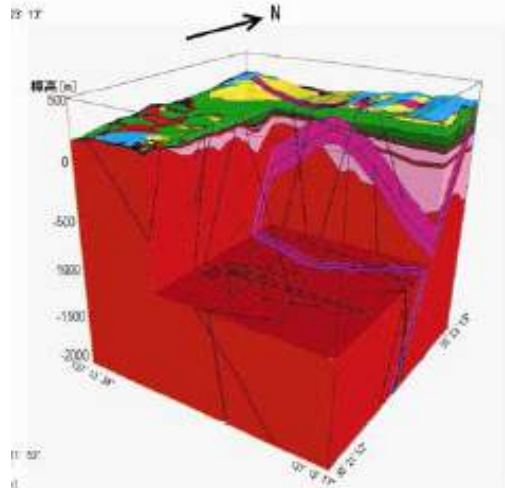
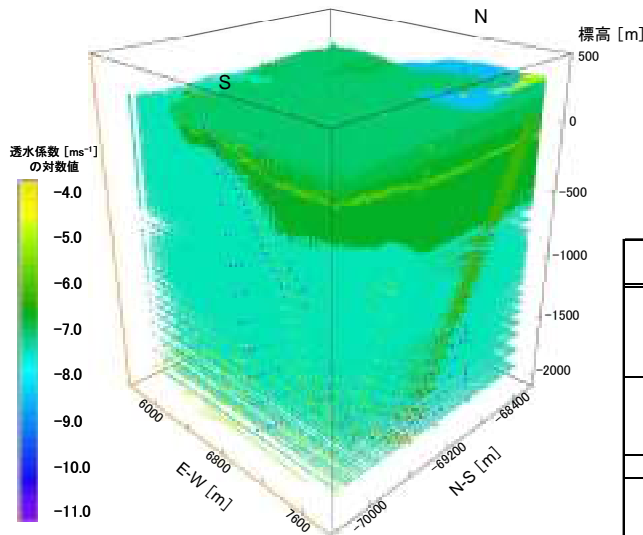


図 5-3 地質構造モデルの例
(分冊 1 図 4.2.4-18 より)



《地質・地質構造要素における透水係数》

地質・地質構造要素		透水係数 [ms ⁻¹] の対数値	
堆積岩	瀬戸層群	-5.0	
	生俵累層	-8.5	
	瑞浪層群	明世累層/本郷累層	-7.2
	土岐夾炭累層	-6.9	
土岐花崗岩	上部割れ目帯	-6.7	
	低角度傾斜を有する 割れ目の集中帯	-5.9	
	下部割れ目低密度帯	-7.5	
月吉断層に伴う割れ目帯		-6.4	
断層	月吉断層の主要部	-11.0	
	その他の断層	断層面方向	-3.9~ -8.0
		断層面直交方向*	-11.0

※12本中5本の断層について透水異方性の有無を設定

図 5-4 水理地質構造モデル (3 次元的な透水性分布) の例
(分冊 1 図 4.2.4-20 より)

主に地質環境の調査・評価側が中心となる作業の結果を受けて、引き続き協働して行う作業として以下の作業を行う。

- ・「物質移行解析に関する地質環境の特性の整備」において、データセットや地質環境モデルを踏まえて、地質環境の特徴と物質移行解析上の留意点などを考慮しつつ地下水化学や岩石の物理化学特性を抽出・整理する。
- ・「地下水流動解析結果の評価」において、地下水流動解析の結果得られる移行経路とそれに沿った流速、移行距離などの移行経路情報を整理するとともに、複数の解析が行われた場合には解析ケースの違いと結果の傾向の対比などを通じて移行経路情報の特徴を把握する。
- ・「物質移行概念の検討」において、上記ふたつの作業結果を総合的に利用しつつ、物質移行解析を検討するうえで必要となる「モデル化対象領域の設定」(物質移行解析で対象とするスケールや岩種など)や「モデル化概念の検討」(亀裂性媒体中の移行、多孔質媒体中の移行、各媒体での物質移行メカニズムなど)および「モデル化方針の設定」(地下水

流動解析から得られる移行経路情報（移行経路およびそれに沿った流速と移行距離）の特徴に応じた物質移行解析を行うためのモデル化の考え方を地質環境の特徴の反映および地質環境モデルとの整合性の確保などの観点から検討し設定する。

この協働して行う作業の結果を受けて、主に物質移行解析側が中心となる作業では以下の作業を行う。

- ・「物質移行解析に関する地質環境の特性の整備」、「地下水流動解析結果の評価」および「物質移行概念の検討」の作業結果を踏まえて、物質移行解析で用いる「物質移行モデル（数値モデルなど）」を具体的に作成するとともに、そのモデルを用いた物質移行解析で用いる「パラメータの設定」を行う。
- ・上記モデルおよびパラメータの不確実性を考慮して解析ケースを設定したうえで、物質移行解析を行う。

最後に、主に物質移行解析側が中心となる作業の結果を受けて、再び協働して行う作業として以下の作業を行う。

- ・「物質移行解析結果の評価」において、解析の結果に影響を与える要因を地質環境の特徴や不確実性などと対比させながら分析・整理する。
- ・「一連の技術の適用性の評価」において、地質環境モデルの作成から物質移行解析までの一連の作業を通じて構築・改良された技術、見出された留意点および繰り返しにおいて反映すべき課題などを評価・整理する。

(b) 物質移行モデルの作成に関する検討

実際の地質環境で取得された情報に基づく物質移行解析を行うためには、先に述べたように地質環境モデルで表現される地質環境の特徴、地下水流動解析の結果の特徴および様々な不確実性を物質移行解析に関するモデルおよびパラメータに反映する必要がある。特に、地下水流動解析の結果の特徴として、移行経路とともに移行経路に沿った地下水流速と移行距離の情報（以下、「移行経路情報」という）を抽出・評価し、物質移行解析の入力とすることが重要となる。ここで、調査で得られた実際の地質環境の特徴が物質移行に及ぼす影響を評価するという意味においては、移行経路情報そのものも地質環境の調査・評価に反映すべき課題などを検討するうえでの重要な中間的指標になり得るが、物質移行に関する移行特性などの影響要因も取り込んだ物質移行解析を行い、たとえば核種移行率などの地層処分システムの性能に対してより総合的で直接的な指標を得ることは有効である。

地下水流動解析から移行経路および地下水流速と移行距離の移行経路情報を得るためには、地下水流動解析結果を用いた粒子追跡法による解析（Particle Tracking : PT）や流線解析などを実施することが有効である。PTを例とした場合、移行経路は各粒子が時間の経過とともに描く軌跡である流跡線で表される。また、計算ステップごとの流跡線の一部を以下では「区間流跡線」と呼ぶこととする。本検討では、PTにおいて分散の効果を考慮し、粒子の数だけ流跡線が生じることとなるが、その流跡線で表される移行経路は図 5-5(a)に示すようにばらつきを有するものになる。本検討では、移行経路の不均質性として以下の2種類に着目した。

- ・各粒子に対する流跡線間の不均質性
- ・各粒子の流跡線に沿った不均質性（区間流跡線の不均質性）。

なお、流跡線に沿った計算ステップごとの移行距離は区間流跡線の長さとして、地下水流速は区間流跡線の長さを計算ステップ時間で除したものとして得られ、これらの移行経路情報も不均質性を有することになる。さらに、水理地質構造モデルが複数の地質構造要素を含む場合には、たとえばある粒子の移行経路が、母岩を通過した後に断層を通過し、再度母岩を通過するなど、複数の地質構造要素を通る複雑なものになるという特徴を有する場合もある。

上記のような地下水流動解析から得られる移行経路、地下水流速および移行距離の移行経

路情報が不均質性を有するという特徴を踏まえると、それらを物質移行解析に取り込む方法論として以下のふたつの方法論が考えられる。

- ① 移行経路情報の不均質性を物質移行解析に直接取り込む方法論。
- ② 移行経路情報の不均質性を統計処理などにより簡略化したうえで物質移行解析に取り込む方法論。

以下では、b-1)において上記①に対応する物質移行解析の方法論の検討、b-2)において上記②に対応する簡略化についての検討を行い、b-3)において結果の例と考察を示す。

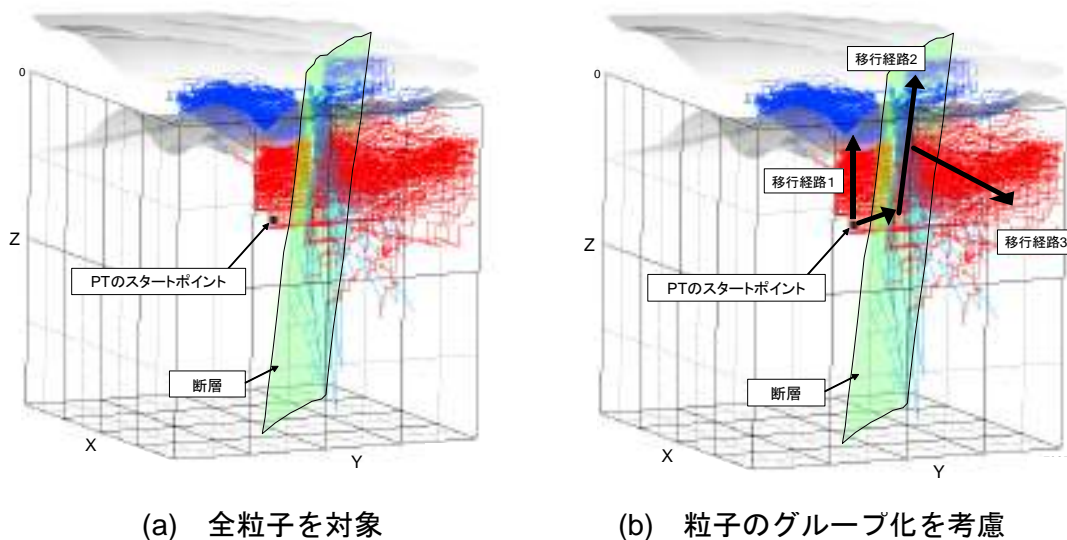


図 5-5 物質移行解析で取り扱う移行経路のイメージ

b-1) 移行経路情報の不均質性を物質移行解析に直接取り込むための方法論

地下水流動解析から得られる移行経路情報が有する不均質性を物質移行解析に直接取り込むための方法論としては大きく以下の2つの方法論が考えられる。

- ・方法論 1-1：粒子追跡法によるすべての粒子の解析結果を対象とした物質移行解析を行う場合

図 5-5(a)に示すような粒子追跡法によるすべての粒子（以下、「全粒子」という）の解析結果を対象とする。このモデル化では、各粒子について、区間流跡線ごとに物質移行モデルをあてはめ、それらを流跡線沿いに区間流跡線の数（計算ステップの数）だけつなげる。そのうえで、区間流跡線ごとの移行経路情報（地下水流速および移行距離）を物質移行モデルに与えて各粒子についての物質移行解析を実施する。

このような解析を、全粒子のそれぞれに対して行う。

- ・方法論 1-2：粒子追跡法による解析結果のグループ化を行い、グループごとに物質移行解析を行う場合

全粒子のうち、流跡線が通過する地質構造要素の種類とその順番が同じものを移行経路が類似しているものとしてグループ化（図 5-5(b)参照）し、グループごとにそのグループに含まれる粒子のそれぞれについて方法論 1-1 と同様のモデル化と解析を行う。

この場合は、各グループについての物質移行解析結果を足し合わせることで、全粒子を対象とした結果とすることができるとともに、どのグループが支配的な移行経路になるかを把握できるという利点を有する。

これらの方法論では、先に述べた流跡線間の不均質性および各粒子の流跡線に沿った不均質性（区間流跡線の不均質性）の両方を取り込んだ物質移行解析を行うため複雑なモデルに

なるという特徴がある。また、方法論 1-1 に対して 1-2 ではグループ化のための前処理が必要となる。

ここで、地下水流動解析のためのモデルとしては断層を平面要素として含む連続体モデルを用いた。また、区間流跡線ごとの物質移行を表現する物質移行モデルとしては第 2 次取りまとめでも用いた 1 次元平行平板モデルを適用した。ここで、瑞浪の深地層の研究施設計画などから得られた地質環境情報（たとえば、分冊 1 4.2 節；太田ほか，2005）を参考に、図 5-2 の「物質移行概念の検討」の作業を行い、亀裂が卓越する亀裂性媒体として取り扱えること、マトリクス拡散現象が生じている知見が得られていること、1 次元平行平板モデルは現在も広く用いられており、またそれらを改良・変更するには地下施設での調査研究段階（第 3 段階）などでの詳細な研究が必要なことなどから、同モデルの適用は妥当であると判断した。なお、これら区間流跡線ごとの物質移行のモデル化およびその流跡線沿いの連結のモデル化については、確率論的プラットフォーム GoldSim（4.2 項参照：Golder Associates, 2002）を利用し、GoldSim が有する亀裂ネットワーク機能を用いて決定論的なモデルを構築した。

一方、物質移行解析で用いるパラメータを整理すると表 5-1 のようになる。上記の方法論 1-1 あるいは方法論 1-2 を用いる場合には、流速と移行距離として、それぞれ区間流跡線ごとの情報を用いる。また、地下水流動解析から得られるダルシー流速を亀裂中の実流速に変換するために水理学的有効間隙率を用いる。パラメータの設定の考え方については(c)で述べる。物質移行解析の入力ソースとなる各移行経路に流入する物質の量は、物質の全流入量を粒子の数で等分することにより設定した。

以上の方法論を用いた場合の物質移行解析結果の例は b-3) に示す。

表 5-1 物質移行解析で用いるパラメータ

<p><水理関係></p> <ul style="list-style-type: none"> ●流速（方法論 1-1 あるいは 1-2 の場合には、区間流跡線ごとの流速を考慮する） ●移行距離（方法論 1-1 あるいは 1-2 の場合には、区間流跡線ごとの移行距離を考慮する） <p><人工バリア中物質移行プロセス関係></p> <ul style="list-style-type: none"> ●緩衝材中での溶解度 ●緩衝材中での拡散係数 ●緩衝材中での分配係数 ●掘削影響領域通過流量 	<p><天然バリア中物質移行プロセス関係></p> <ul style="list-style-type: none"> ●分散長 ●亀裂開口幅 ●マトリクス拡散寄与面積率 ●マトリクス拡散深さ ●マトリクス部の間隙率 ●マトリクス部での拡散係数 ●マトリクス部での分配係数
--	--

b-2) 移行経路情報の不均質性を統計処理などにより簡略化したうえで物質移行解析に取り込むための方法論

ここでは、前項 b-1) で示した比較的複雑なモデルを用いる方法論に対して、地下水流動解析から得られる地下水流速と移行距離の不均質性を含む情報を統計処理して、より簡略化して取り扱う方法論を検討する。

簡略化の考え方としては、前項 b-1) で示したふたつの方法論のそれぞれに対して、以下の考え方で統計的な処理を導入する。

- ・方法論 2-1：粒子追跡法によるすべての粒子の解析結果を対象とした物質移行解析を行う場合

まず各粒子ごとに、流跡線全体での移行距離、およびこの移行距離と流跡線全体での移行時間（計算ステップ時間の合計）から求められる流跡線全体での流速を算出する。それらを全粒子を対象として統計処理することにより、全粒子の流速および移行距離の平均値と標準偏差などの統計量を求める。

この場合には、ひとつの 1 次元平行平板モデルで全粒子の移行経路を代表する。

物質移行解析では、このひとつの 1 次元平行平板モデルに対して流速と移行距離を先に述べた統計量に基づき与えることになる。流速と移行距離の与え方としては、1) 平均値と標準偏差により表される分布などからサンプリングしモンテカルロシミュレーションを行う、2) 分布のいくつかのポイントを抽出し解析する、さらには 3) 平均値などを代表値として解析する、などの方法が考えられる。この中では、3) が最も簡略化した方法論となる。また、1) や 2) は移行経路情報の不均質性を、データの不確実性として取り扱うことに該当する。

- ・方法論 2-2：粒子追跡法による解析結果のグループ化を行い、グループごとに物質移行解析を行う場合

各グループに含まれる粒子を対象に、通過する地質構造要素ごとに方法論 2-1 と同様な統計処理を行う。結果として、各グループは地質構造要素ごとに流速および移行距離の統計量を持つ。

この場合には、各地質構造要素を 1 次元平行平板モデルで表現し、各グループに含まれる地質構造要素の数だけ 1 次元平行平板モデルをつなげてモデル化する。

物質移行解析では、地質構造要素ごとに統計量に基づき流速と移行距離を与える。流速と移行距離の与え方は、方法論 2-1 の 1) から 3) と同様である。

これら方法論のモデル化および解析には、前項 b-1)と同様に GoldSim を用いたが、1 次元平行平板モデルをひとつ、あるいはせいぜい数個をつなげてモデル化するため、前項 b-1)で示した方法論に比べて比較的簡単なモデルとなる。また、平均値などに基づく決定論的な解析以外にモンテカルロシミュレーションを行う場合も含まれるという点で違いがある。

物質移行解析を行うために必要なパラメータは、前項 b-1)と同様である (表 5-1 参照：ただし地下水流速と移行距離は上記で述べた統計量に基づき設定することになる)。

以上の方法論を用いた場合の物質移行解析結果の例は b-3)に示す。

b-3) 上記方法論を用いた物質移行解析結果の例と考察

前項 b-1)で示した方法論 1-1 と 1-2 を用いた物質移行解析、および上記 b-2)で示した方法論 2-1 と 2-2 を用いた物質移行解析 (平均値を代表値とした場合) の例として、第 2 次取りまとめでの設定を参考にパラメータ値を設定し例示的な解析を行った (図 5-6 参照)。図 5-7 に Cs-135 の結果の例を示す。

図 5-7 の比較により、本解析条件では、複雑なモデル (方法論 1-1 と 1-2) の移行率は同様な結果となっており、また単純化したモデルではあるがグループ化を考慮している方法論 2-2 も同様な結果となっている。また、Cs-135 の結果はふたつのピークを持つという特徴があり、ふたつの主たる移行経路が寄与している。一方、単純化したモデルでかつ全粒子を対象とした方法論 2-1 の場合は、ひとつのピークしか得られず移行率も数倍高い結果となっており、他の方法論で得られた移行率の傾向および最大値を十分には再現できない結果となっている。なお、他の核種についても、方法論間の比較結果は図 5-7 の Cs-135 の場合と同様であった。

以上の実際の地質環境を対象とした場合の物質移行モデルの作成に関する検討から、以下の知見が得られた。

- ・地下水流動解析 (粒子追跡法による解析を含む) の結果から得られる地下水流速や移行距離の不均質性を有する情報を物質移行解析に反映するための複数の考え方とそれに対応する解析手法を具体化するとともに、例示的な解析を通じて比較を行った。
- ・その結果、このような物質移行解析においては、移行経路のグループが複数あることが解析結果を特徴づける場合のあることを示すとともに、このような場合に簡略化したモデルを適用するには、全粒子を対象とする方法論 2-1 よりも、移行経路のグループ分け

を考慮する方法論 2-2 の方が複雑なモデルの結果に対する再現性が高くなることを確認した。

- また、複雑なモデルと簡略化したモデルを準備し、それらに対比させつつ検討を進めることにより、詳しい解析を行う必要がある場合には複雑なモデルを、感度解析など多数の解析を行う必要がある場合には簡略化したモデルを用いるなど、解析の目的に応じて適切な手法を選択することができると思う。
- これらにより、物質移行解析と実際の地質環境の特徴を反映した地下水流動解析結果との整合性を向上させるとともに、解析作業を効率的かつ効果的に実施できると考える。

●評価対象核種

- Np-237→Th-229
- Se-79
- Cs-135

●入力ソース

第2次取りまとめにおける人工バリアからの核種移行率

●天然バリア中核種移行データ

パラメータ		単位	値
岩盤の分配係数	Np-237	m ³ kg ⁻¹	1
	Th-229		1
	Se-79		0.01
	Cs-135		0.01
自由水中の拡散係数		m ² s ⁻¹	4.00E-09
岩盤の実効拡散係数		m ² s ⁻¹	9.40E-13
岩盤の空隙率		-	0.01
岩盤の真密度		kg m ⁻³	2700
マトリクス拡散深さ		m	0.1
マトリクス拡散寄与面積率		%	100
分散長		m	0

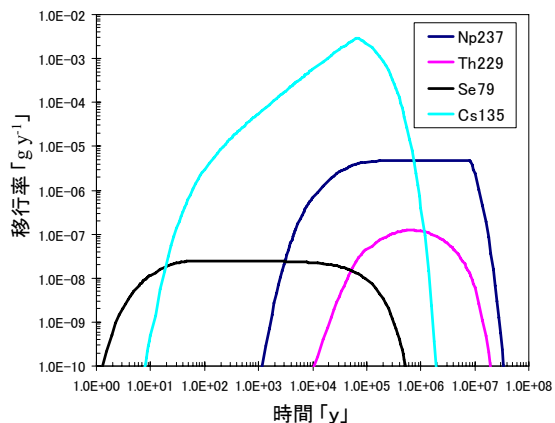


図 5-6 物質移行解析で用いたパラメータ

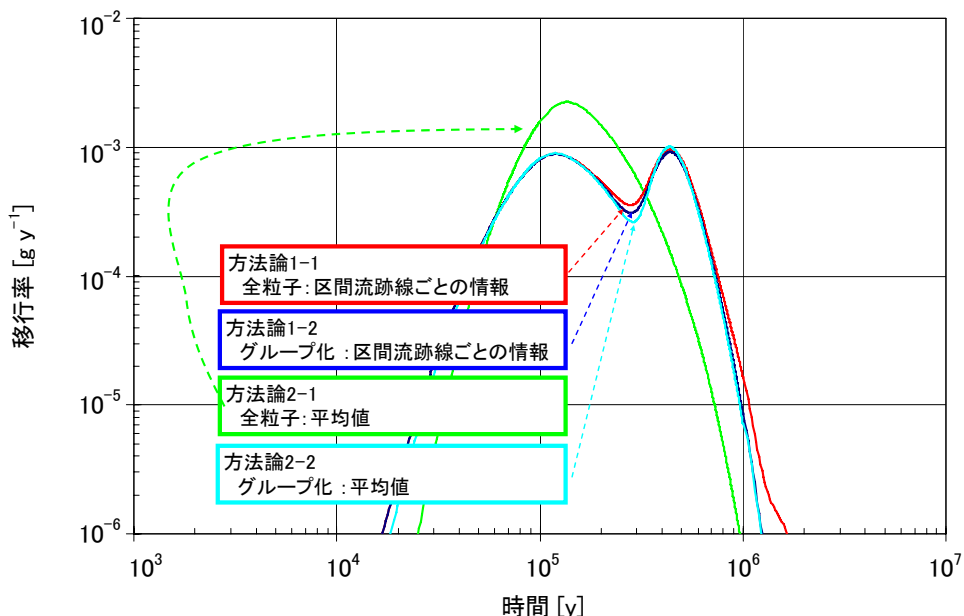


図 5-7 複雑なモデルと簡略化したモデルの物質移行解析結果の比較の例 (Cs-135)

(c) 物質移行解析で用いるパラメータの設定に関する検討

物質移行解析で用いるパラメータについては、図 5-2 に示した作業フローに従い、ふたつの深地層の研究施設計画などから得られた地質環境情報（たとえば、分冊 1 4.2 節；分冊 1 4.3 節；太田ほか，2005）を活用したパラメータ値の設定を試みている（牧野ほか，2005）。以下に、その取組みの概略を述べる。ただし、ここで述べるパラメータ値の設定は、b-3) で示した方法論の違いに着目した解析には反映していない。

まず、地下水組成および間隙水組成については、深地層の研究施設計画で得られた地下水組成、鉱物組成およびそれらの深度に対する傾向などの情報を活用し、第 2 次取りまとめおよび 3.2 節で用いた手法を適用し、物質移行の基点として仮定した深度での地下水組成の推定を行った。

次に、この地下水組成および間隙水組成に対して、物質移行解析に必要な分配係数、拡散係数および溶解度の設定を以下のように行った。

- ・岩盤での分配係数は、2.2 節で更新した収着データベースおよび 3.3.3 項で示した幌延の深地層の研究施設計画で取得されたコア試料を用いたバッチ式収着試験の結果を反映しながら、第 2 次取りまとめで用いた手順や手法に準拠した設定を行った。
- ・拡散係数については、第 2 次取りまとめ段階での拡散データベースを用いた拡散係数と間隙率の関係式、瑞浪の深地層の研究施設計画で取得された間隙率、および 3.1.3 項で示した幌延の深地層の研究施設計画で取得されたコア試料を用いた拡散試験結果などを反映しながら、第 2 次取りまとめで用いた手順や手法に準拠した設定を行った。
- ・なお、溶解度および緩衝材中の拡散係数と分配係数については、上記で設定した地下水組成および間隙水組成を第 2 次取りまとめで考慮した組成と比較したうえで、現段階では第 2 次取りまとめでの岩種と地下水の組み合わせに対して設定した値を変更する必要はないと判断した。

さらに、亀裂中の実流速、マトリクス拡散深さおよび掘削影響領域通過流量の設定を以下のように行った。

- ・亀裂中の実流速については、地下水流動解析から得られるダルシー流速を水理学的有効間隙率を用いて変換することとした。このときに用いる水理学的有効間隙率は、ボーリング孔で実施された水理試験などから得られる透水性割れ目の情報および第 2 次取りまとめで用いた透水量係数と物質移行開口幅の関係などに基づいて、透水性割れ目の頻度とそれらの割れ目の開口幅の推定結果から求めた。
- ・マトリクス拡散深さについては、土岐花崗岩において観察された透水性割れ目近傍におけるウラン系列核種 (U-238, U-234, Th-230) の分布プロファイルから推定された値、および第 2 次取りまとめで整理した花崗岩類におけるマトリクス拡散深さの値を参考とした設定を行った。
- ・人工バリア中物質移行解析の外側境界条件として必要な掘削影響領域通過流量については、地下水流動解析から得られるダルシー流速に坑道断面積と掘削影響領域断面積の合計を掛け合わせることににより設定した。

なお、上記の検討では、設定に利用できるデータが必ずしも十分に整備されていない段階であることを勘案して、パラメータ値の不確実性を幅として具体化することとし、あわせて、各パラメータの設定作業で用いる上流側作業の結果の不確実性の影響なども図 5-2 のフローに従って取り込むことに留意している。たとえば、岩盤での分配係数の設定では、上流側となる地下水組成の推定結果の不確実性を考慮に入れるとともに、不確実性の幅として収着データベースのヒストグラムのうち最も頻度の高い区間の下限と上限を設定することを検討している。

(d) 実際の地質環境を対象とした物質移行解析結果の評価に関する検討

第2次取りまとめなどでの核種移行解析から得られた知見、および4.2.2項に示したデータ不確実性を考慮したモンテカルロシミュレーションによる核種移行解析とそれに対する感度分析の結果などから、データの不確実性の大きさと物質移行解析結果への影響の大きさの観点から注意すべきパラメータとして、地下水流速、分配係数（岩盤）およびマトリクス拡散深さが優先的にリストアップされる。これらのパラメータは、図5-2の作業フローに沿った検討（牧野ほか、2005）において重視したパラメータでもある。

図5-2の作業フローの「物質移行解析結果の評価」の作業では、このような影響の大きなパラメータの抽出・確認やそのパラメータの不確実性の影響度の分析などに基づき、不確実性の低減あるいは不確実性の明確化の観点で着目すべき課題を評価し、一連の作業の繰り返しに反映していくことが重要となる。

ここで、たとえば地下水流速の不確実性は、実際の地質環境を対象とした検討の場合、地下水流動解析で用いる水理地質構造モデルの不確実性（地質媒体・地質構造の透水性、動水勾配の不確実性などを含む）あるいはダルシー流速を実流速に変換するために用いる水理学的有効間隙率の不確実性などの複数の要因の影響を受けたものになり、それらを適切に評価し不確実性として定量化することは、第2次取りまとめのような保守性を優先した場合よりも難しくなると考えられる。

なお、事業における文献調査による概要調査地区の選定段階およびボーリング調査などを行う概要調査段階においては、これらのパラメータについての情報量に限界があると考えられるため、情報の拡充により不確実性を低減することは容易ではない。そのような状況では、まず、原位置などでの情報の取得を進めることとあわせて、これらパラメータに見込んだ不確実性を客観的に分析することも重要になると考える。すなわち、パラメータ間で不確実性の設定や推定の考え方などに大きな違いはないか、あるいはどこでどのような保守性を取り込んでいるかなどを確認し、過度に保守的な不確実性を見込んでいる場合には、その見直しを行うことが必要となる。これらの作業により、たとえばあるパラメータの不確実性の幅について、当初見込まれていたよりも小さな幅とすることが適切であることが見出されれば、その不確実性の設定を見直して、より合理的な評価とすることができる。これは不確実性の低減と同じ効果となる。また、不確実性の低減には至らなくとも、どこにどのような不確実性の要因があるかを分析・整理し、着目すべき点を明らかにすることは重要であり、一連の作業の枠組みの中で下流の作業に適切に伝えられるべき重要な知見である。また、(b)で述べたような方法により、物質移行に寄与する主たる移行経路などを見出すことは、優先的に不確実性を減らすべき項目を調査に反映するためにも有効である。このためにも、図5-2に示したような作業フローに従った体系的な作業を行うことが重要と認識しており、深地層の研究施設計画の成果を活用した検討の中でも不確実性の具体化を重要なポイントのひとつとしている（牧野ほか、2005）。また、4.2.1項での誘出法を用いたデータの不確実性を定量化する試みの中で重要性を指摘したように、パラメータの不確実性を分布として定量化する作業では、対象とするパラメータの特徴に応じて重視すべき影響要因を明確にし共有することが重要であり、また不確実性を設定する際に保守性を重視するのか現実性を重視するかなどの不確実性の取扱い方針も幅や分布の設定結果に大きく影響することにも留意する必要がある。

また、調査の進展に応じて段階的に原位置での情報や知見が増加してきた場合には、その前後でパラメータの不確実性がどのように変化するかを適宜分析・確認し、その変化がどのような影響を与えるか、どのパラメータの不確実性の重要度が増加しているか、あるいは低下しているかなどを物質移行解析結果を指標として判断し、それ以降の調査研究項目の重点化や配分の見直しを行うことが考えられる。この点においても、図5-2に示したようなフローに従った体系的な作業を具体化し繰り返し行うことが重要である。なお、こうした影響の分析に関する作業においては、4.2.2項で示した決定木分析などの感度分析技術が重要になる。

参考文献

Golder Associates (2002): GoldSim Contaminant Transport Module, User's Guide, Golder Associates Inc.

牧野仁史, 澤田淳, 前川恵輔, 柴田雅博, 笹本広, 吉川英樹, 若杉圭一郎, 小尾繁, 濱克宏, 操上広志, 國丸貴紀, 石井英一, 竹内竜史, 中野勝志, 三枝博光, 竹内真司, 岩月輝希, 太田久仁雄, 瀬尾俊弘 (2005): “地質環境の調査から物質移行解析にいたる一連の調査・解析技術-2つの深地層の研究施設計画の地上からの調査研究段階(第1段階)における地質環境情報に基づく検討”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN1400 2005-021.

OECD/NEA (2002): “Establishing and Communicating Confidence in the Safety of Deep Geologic Disposal, Approaches and Arguments”, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Paris, France.

OECD/NEA (2004): “Geological Disposal : Building Confidence Using Multiple Lines of Evidence”, First AMIGO Workshop Proceedings, Yverdon-les-Bains, Switzerland, 3-5 June 2003, Organization for Economic Cooperation and Development / Nuclear Energy Agency, Paris, France.

太田久仁雄, 佐藤稔紀, 竹内真司, 岩月輝希, 天野健治, 三枝博光, 松岡稔幸, 尾上博則 (2005): “東濃地域における地上からの地質環境の調査・評価技術”, 核燃料サイクル開発機構, JNC TN7400 2005-023.

Sawada, A., Uchida, M., Shimo, M., Yamamoto, H., Takahara, H. and Doe, T. W. (2000): “Non-sorbing Tracer Migration Experiments in Fractured Rock at the Kamaishi Mine, Northwest Japan”, Engineering Geology, Vol.56, pp.75-96.

Sawada, A., Ohnishi, Y., Ohtsu, H., Ijiri, Y. and Nishiyama, S. (2002): “Applicability of the Concept of Fractal to Fracture Network Model in Rock Mass”, in Rock Engineering Problems and Approaches in Underground Construction (Choi, S. Y., Ryu, C. H., Jeon, S. W. and Moon, H. K. (eds.)), Korean Society for Rock Mechanics, pp.203-210.

6. おわりに

6.1 成果のまとめと反映内容

1.4.1 項で示した課題と進め方に対する第 2 章から第 5 章までの成果をまとめるとともに、事業・安全規制への反映内容を整理すると以下の通りである。

6.1.1 核種移行データベースの整備

(1) 放射性元素の熱力学データベースの整備

(i) 成果のまとめ

- 核種の溶解度設定の基盤となる熱力学データについては、Np(IV)の水酸化炭酸錯体、U(IV)、Pu(IV)、Np(IV)のアモルファス含水酸化物の溶解度積や加水分解定数などの熱力学データを取得し、既存データとの比較などを踏まえ、その信頼性の向上を図るとともに、不確実性の検討の基礎を充実させた。
- 放射性元素の熱力学データベース (JNC-TDB) については、最新の OECD/NEA TDB も含めて、各種地球化学計算コードに対応したフォーマットに変換し、透明性、客観性の確保などの観点から外部公開ホームページ上で一般に公開した。本データベースへの国内外の利用者登録は、2005 年 7 月時点で 300 名を突破しており、利用者からの指摘に対する改訂も行なっている。さらに、現状で入手可能な高イオン強度での活量係数補正に関する Pitzer モデルのパラメータを整備し、地球化学計算コード EQ3/6 で利用可能なフォーマットの電子ファイルとして整備した。

(ii) 反映内容

放射性元素の熱力学データベース (JNC-TDB) を中心に OECD/NEA TDB も含めて、最新のデータベースを外部公開ホームページから外部の利用者にダウンロードが可能となるシステムとして公開し、国内外の関係者の利用に供した。熱力学データベースは、今後も定期的かつ恒常的に更新してゆく予定であり、事業・安全規制を問わず安全評価の基盤として活用できるのみでなく、学術的にも活用できる状況としている。

(2) 収着・拡散データベースの整備

(i) 成果のまとめ

- 核種の収着データについては、処分サイトが特定されていないことから、幅広い地質環境への適用性を考慮して、データが不足していた堆積岩での海水系地下水環境あるいはアルカリ環境での Cs, Se, Sn などの収着データを拡充した。
- 核種の収着データベース (JNC-SDB) については、透明性、客観性の確保などの観点から外部公開ホームページ上で一般に公開した。利用者登録数は JNC-TDB に同じである。また、1998~2003 年に公開された収着データ約 1,200 件を追加、更新した。データ数が増えたことにより、Cs, Am などの元素の分配係数のイオン強度や pH に対する依存性がより明確になり、イオン交換や表面錯体反応といったメカニズムと対比させた議論が可能となった。さらに、収着データベースを用いたデータの信頼度評価に関する検討の一環として、信頼度付与のための指標を作成した。
- 核種の収着データ取得および収着データベース開発なども踏まえ、社団法人日本原子力学会標準化委員会の活動のひとつとして行なわれている深地層処分のバリア材を対象とした収着分配係数の測定方法の標準化作業に汎用的な条件や方法などの基盤情報を提供した。

(ii) 反映内容

収着に関する最新のデータベース (JNC-SDB) を公開し、国内外の関係者の利用に供した。収着データベースは、今後も定期的かつ恒常的に更新していく予定であり、事業・安全規制

を問わず安全評価の基盤として活用できるのみでなく、学術的にも活用できる状況としている。

6.1.2 安全評価モデルの高度化

(1) 岩盤中水理・物質移行モデルの高度化

(i) 成果のまとめ

- ・地上からの調査段階で必要となる地下水流動解析の信頼性向上に資する以下のモデル化技術の整備を行った。
 - データの少ない広域とデータの多い処分場近傍領域を同時に解析するために、亀裂ネットワークモデルと連続体モデルを接続した「入れ子式モデル」を開発するとともに、その有効性を確認した。
 - 間隙水圧データから地下深部の透水係数を推定する技術を、幌延地域で観測されている間隙水圧データに適用し、稚内層で観測された高い間隙水圧は、稚内層あるいはその上位の声問層上部に低透水性の地層が存在することに起因する可能性が示唆された。このことにより、本手法により、対象地域の地下水流動に影響を及ぼす可能性がある要因を抽出し、調査や解析にフィードバックできる可能性が示された。
 - 水理地質構造モデルの妥当性を水理データ以外を用いて検証するための手法のひとつとして、水理と地下水水質変化の統一的なモデル化に着目し、ケモメトリックス法による端成分とその混合比の推定に加え、バックワードトラッキングにより観測地点で採取された地下水の複数の供給地域を推定することにより端成分の混合割合の時間変化をモデル化する手法を開発し、スウェーデンのエスポ地下研究施設周辺地域における坑道掘削に伴う水質変化の予測解析に適用した。
 - 堆積岩の不均質場の特性をモデル化し定量的に把握する手法として、堆積プロセスを考慮して堆積岩の地質構造を推定する技術を開発した。
 - 水理解析から物質移行解析に受け渡す重要情報のひとつであり透水係数の不均質性の影響を受ける移行経路長などについて、その不確実性を確率有限要素法を用いて評価する手法を開発するとともに、従来のモンテカルロ法との比較・検討を行った。
- ・結晶質岩・堆積岩について安全評価上重要となる亀裂を対象とした水理・物質移行の現象理解に関して以下の成果が得られた。
 - 1ケースではあるが交差する2枚の亀裂を含む岩体試料に対して亀裂交差部と交差部周辺の亀裂の透水量係数を測定・比較し、亀裂交差部に沿った方向の透水量係数が周辺の亀裂より大きいことを示した。
 - 亀裂を有する岩体のトレーサー試験技術を改善するとともに、岩体研削により亀裂開口幅を測定する手法を開発した。また、格子ガスオートマトン法を用いて、微細かつ複雑な亀裂表面形状を取り扱える流体・物質移行解析コードを開発した。
 - 亀裂充填物質の拡散係数を測定し、移流間隙と接する岩石基質部に拡散するだけでなく、亀裂充填物質を介して亀裂面全体からマトリクス拡散が起きうる可能性があることを示した。また、トレーサー試験に基づき安全評価で用いるパラメータを解釈するに当たっては、亀裂充填物質の影響を考慮する必要があることを示した。さらに、亀裂中の透水量係数の不均質性や亀裂内部の構造が物質移行に与える影響について解析的に検討を行った。
 - 原位置トレーサー試験からパラメータ値とその不確実性を推定する手法を開発した。
 - 新第三紀堆積岩中の亀裂の影響を、コアを用いた室内試験で評価し、間隙率の異なる堆積岩で、亀裂が移行経路になり得る場合とそうでない場合があることが示された。また、物質移行開口幅と透水量係数の相関性については第2次取りまとめの知見が利用可能であることを示した。

(ii) 反映内容

- ・概要調査や精密調査などの地上からの調査段階では、広域を対象とした地下水流動解析が行われる。その際には、定性的なデータの利用を含め、限られたデータを有効に活用することや、水理地質構造モデルの不確実性を提示することなどにより、評価の信頼性を高めることが必要となると考えられる。これらの課題に対応する基盤技術として、以下の地下水流動評価のためのモデル化技術を整備した。
 - 調査量の粗密に応じて連続体モデルと亀裂ネットワークモデルを組み合わせることのできる入れ子式モデル化の技術
 - 実測された間隙水圧から未知の透水係数を推定し、限られた調査試験データから地下水流動に影響を及ぼす要因を抽出する技術
 - 水理データに加え地下水水質変化を統一的にモデル化し水理地質構造モデルの信頼性を評価する技術
 - 堆積プロセスなどに関する地質情報を用いて堆積構造とその不確実性を推定する技術
 - 透水係数の不均質性に起因する移行経路長などの不確実性を定量的かつ効率的に評価する技術
- ・亀裂を対象とした水理・物質移行現象の理解に関しては、安全評価上の考慮が重要となると考えられる特性・現象に関して以下の知見が得られた。
 - 結晶質岩における物質移行の基本単位である単一亀裂について、その特性を把握するための試験技術、および開口幅などの不均質性の影響を評価する解析技術を整備。
 - 亀裂充填物質が物質移行に与える影響に対して見通しを得るとともに、トレーサー試験結果から安全評価に用いるパラメータを抽出する際に亀裂充填物質の影響を考慮することの重要性を指摘。
 - 間隙率の異なる新第三紀の堆積岩において亀裂が移行経路となりうる可能性が異なることを示すとともに、物質移行開口幅と透水量係数の相関性については第2次取りまとめの知見が利用可能であることを確認。

(2) 地下水・間隙水水質形成モデルの高度化

(i) 成果のまとめ

- ・地下水水質に関しては、幌延の深地層の研究施設計画や茂原地域でのボーリング孔から採水され地表で測定された地下水データを対象に、熱力学的手法などを用いた深部地下水水質の推定方法を例示した。
- ・間隙水水質に関しては、圧縮ベントナイト中の間隙水の pH を直接測定できる技術を開発した。
- ・セメント系材料が用いられた場合に想定される高アルカリ溶液とベントナイトが反応した場合の変質を検討する際に必要な沸石類やセメント系鉱物などの熱力学データベース (JNC-TDB.TRU) を整備した。

(ii) 反映内容

- ・地表からの調査段階において、pH や Eh の地下深部での値をそのまま測定することが不可能な場合の深部地下水水質の推定方法を例示。
- ・圧縮ベントナイト中の間隙水 pH の測定手法を提示。
- ・支保工材料として普通セメントを用いた場合の地球化学的影響を解析するために必要となる鉱物などの熱力学データベースを提示。

(3) 現象論的核種移行モデルの開発

(i) 成果のまとめ

- ・ガラスの長期溶解挙動に関しては、変質鉱物として pH11 以上では方沸石、pH11 以下ではスメクタイトの生成が確認され、方沸石生成の場合はガラス溶解が加速されることが分かった。また、水和変質モデルを用いた長期浸出挙動の評価を行った。
- ・核種の溶解現象に関しては、溶解度制限固相の変遷について、Th に引き続き U についても非晶質含水酸化物から結晶性酸化物に変遷することが確認され、第 2 次取りまとめにおける溶解度制限固相の設定が保守的であることが示された。また、固溶体モデルの開発について、(U(IV), Np(IV))O₂(am)の固溶体の溶解挙動が理想固溶体モデルで表現できることを示した。さらに、(Ra(Ba), Ca)CO₃の共沈挙動について、元素分配比の方解石沈殿速度依存性を取得するとともに、非理想系の固溶体モデルによる Ra 溶解度の評価手法を示した。
- ・収着・拡散挙動に関しては、収着メカニズムに基づき分配係数を推定する手法を提示するとともに、幌延の深地層の研究施設計画で得られた岩石試料を用いて取得した Cs の収着データがイオン交換モデルによりほぼ説明できることなどを示した。これにより、現状では適用可能な元素には制限があるものの、環境条件に対応した分配係数値の推定および環境条件の変化に対する感度の予測が可能となった。さらに、緩衝材の微細間隙構造中や岩石中での陰イオンの移行挙動や移行経路などに関する現象理解が進んだ。

(ii) 反映内容

溶液条件や媒体の違いに応じたガラスの溶解、核種の溶解、収着、拡散などのデータ取得と現象理解が進み、安全評価の信頼性向上や不確実性評価の基盤となるデータや現象解析モデルの整備が進んだ。

(4) コロイド、有機物、微生物の影響評価モデルの開発

(i) 成果のまとめ

- ・コロイド影響

地下水中における濃度、安定性、移行性、核種収着性・錯形成能およびそれらの不可逆性の 5 つの特性を評価する必要があることを踏まえた検討を行った。濃度と安定性については、原位置地下水中のコロイド特性（濃度・粒径分布）や Am の収着特性を評価した。移行性については、粒子の大きさが 1 ~1,000 nm と定義されるコロイドのうち最も小さな 1 nm のコロイドをろ過することのできる緩衝材の有効粘土密度を均質化モデルにより試算した。収着性と不可逆性については、Cs のベントナイトコロイドへの収着性が粉末状ベントナイトより大きいことを確認するとともに、可逆性であるとの知見が得られた。さらに、コロイド影響評価モデルとして、亀裂性媒体と多孔質媒体の両方に適用可能であり核種のコロイドへの収脱着速度を考慮できる核種移行計算コードを開発し、海外の地下研究施設においてその有効性を確認するとともに、コロイド影響が顕在化する可能性のある環境条件の例を示した。
- ・天然有機物影響

コロイドの場合と同様に、5 つの特性を評価する必要があるとして検討を行った。濃度と安定性については、実際の地下水中の有機酸の同定と濃度測定を行って特性評価手法の有効性を確認した。移行性については、圧縮ベントナイト有機物透過特性を調査し、蒸留水条件に比べ人工海水条件下の方が透過しやすいことを確認した。錯形成能については、Th, Np と有機物の相互作用について錯生成定数を取得した。また、Th(IV)は溶液中の炭酸濃度がある程度以上の場合には有意に錯体を形成しない可能性のあること、Np(IV)はフミン酸と不可逆な錯形成をする可能性があることなどを示した。

・微生物影響

微生物がコロイド的挙動をする場合、微生物濃度によっては核種移行が促進される可能性があることを示した。

(ii) 反映内容

コロイドや有機物の特性評価手法を例示するとともに、亀裂性および多孔質媒体におけるコロイド影響評価モデルを提示した。また、コロイドや有機物が収着や溶解度に与える可能性のある影響を示した。微生物影響については、コロイド的挙動を仮定した評価の可能性を示した。

(5) 生物圏評価モデルの高度化

(i) 成果のまとめ

- ・実際の地表環境の特徴を考慮するため、希釈などの効果に大きく係わる地表環境と生物圏とのインターフェース (GBI) を実際の地表環境に応じて設定するための着眼点や考え方、および設定上考慮すべき要因を把握するための調査項目を概略的に検討した。
- ・海域を GBI としたモデル、下部土壌を GBI としたモデル、あるいは気候変動を考慮したモデルなどを拡充した。
- ・パラメータの重要度の分析と設定状況の整理を組み合わせることにより、優先的に取得すべきデータを絞り込む手法を提示した。
- ・線量およびリスク以外の安全指標については、基盤的情報として天然放射性核種の濃度とフラックスのデータを収集・整理するとともに、集水域に着目した天然放射性核種のフラックスの算出方法を例示した。

(ii) 反映内容

- ・実際の地表環境の特徴に応じた評価モデルを整備するとともに、多くのパラメータを必要とする生物圏評価においてデータ取得の必要性や優先度を検討できる手法を提示した。
- ・線量およびリスク以外の安全指標として利用される可能性のある天然放射性核種の濃度とフラックスについて、検討の基盤となるわが国での情報を整理した。

6.1.3 安全評価手法の整備・高度化

(1) シナリオに関する技術の高度化

(i) 成果のまとめ

- ・シナリオ解析技術については、シナリオ解析において重要でありかつ複雑で時間を要する主要な原因となっていた FEP の相関関係の整理に対して、FEP の相関関係をマトリクス形式で表現するとともに、安全機能という結果側の視点を加えた階層的整理を行い構造化する手法を考案した。また、その手法を計算機上に展開することにより、相関関係の充分性の確保、作業の効率化、および作業の追跡性・透明性の確保を可能とする技術を開発した。
- ・天然現象影響評価については、わが国で起こり得る天然現象とそれに起因する地質環境の変化などを事例研究の成果に基づき整理するとともに、それをシナリオの作成や影響解析に反映する手順と作業内容を作業フレームとして整理し、火山・火成活動を例とした試行による適用性の確認を通じて、過度の保守性を排除し現実性を重視した天然現象影響評価を行う技術を開発した。

(ii) 反映内容

- ・安全評価の基本となるシナリオ構築において重要な FEP の相関関係の整理について、充分性、追跡性、透明性に加えて作業性を向上させる技術を整備した。

- ・天然現象影響評価において、地質学的知見をより合理的に評価に反映することにより過度の保守性を排除可能とするとともに、整合性・追跡性についても確保可能な作業フレームを整備した。

(2) 不確実性評価技術の高度化

(i) 成果のまとめ

- ・パラメータの分布設定技術については、誘出法を用いた分布設定手順の検討と試行により、分布設定手順を具体化するとともに、留意点としてパラメータの変動要因について専門家間で情報を共有することが重要であるとの知見を得た。
- ・データ不確実性の影響の定量化については、複数のデータの不確実性が同時に存在する場合における影響をモンテカルロシミュレーションで評価可能な核種移行解析モデルを開発した。また、決定論的な手法と確率論的な手法を相互に補完的に用いることにより、不確実性評価の信頼性と効率を向上させることができる見通しを得た。
- ・感度分析技術では、従来の重回帰分析に加えて、クラスタ分析、判別分析、決定木分析などの手法を、分析の目的に応じて使い分けたり、組み合わせて使うことの有効性を提示した。
- ・モデル不確実性の影響の定量化では、第2次取りまとめの段階で、簡略化したり、保守的にあえて効果を見逃したプロセスとして、掘削影響領域での移行遅延とガラス溶解に対する割れの影響についてモデル化と評価を行い、これらの現象の現実的評価がシステム性能評価の頑健性を高める可能性を示した。

(ii) 反映内容

不確実性を有するパラメータの分布設定、データ不確実性の影響の定量化、感度分析およびモデル不確実性の影響の定量化について、基盤的な技術となる手法やツールを整備した。また、これらの技術の適用を通じて、第2次取りまとめで用いたモデルの保守性やデータ不確実性の取扱いの妥当性を支持する知見を得た。さらに、今後の不確実性の評価においては、これら基盤的な技術の向上とともに、他の研究開発に適用することにより、その時点における不確実性の重要性を評価し、研究開発にフィードバックすることの重要性が増すことを示した。

(3) 技術情報の統合技術

(i) 成果のまとめ

調査・研究の進展にともなう技術情報の増大、および広範囲におよぶ地層処分の各研究要素間での技術情報の受け渡しの発生とその複雑化などに対処し、調査・研究の整合性と信頼性の確保を図るため、技術情報を利用しやすい形で統合的に管理し共有化することが可能なシステム（技術情報統合システム：JGIS）を構築した。

(ii) 反映内容

実際のサイトにおいては、調査・設計・安全評価が統合した評価が要求されるが、このために必要な情報管理の技術を整備した。

6.1.4 安全評価手法の適用性確認

(i) 成果のまとめ

- (a) 天然バリア中核種移行に関する項目を中心に、上記 6.1.1 項～6.1.3 項で整理した安全評価に関する基盤技術および安全評価手法を深地層の研究施設計画や海外の地下研究施設などにおける実際の地質環境データに対して適用した結果や適用を通じて開発・改良した技術などを整理するとともに、実際の地質環境を対象とする際の留意点・課題について

て提示した。

・地下水流動評価

- 実際の地質環境の特徴を反映可能なモデルの開発

入れ子式モデルの適用を図るとともに、亀裂ネットワークモデルを構築する上で流体検層による水みちの透水量係数の測定精度の検討や亀裂の長さデータ設定におけるフラクタル特性データの活用などが重要になることを示した。

- 実測されたデータから水理パラメータを推定する技術の開発

幌延の深地層の研究施設計画のボーリング孔で観測された間隙水圧から透水係数を推定した結果、高い間隙水圧が観測された稚内層の上位の声問層上部に低い透水係数が分布する可能性が示唆されるなど、観測された間隙水圧から透水係数を推定する手法が、実際の地質環境データに基づき水理地質構造モデルを構築する上での課題を抽出する上で有効であることを確認した。

- 水理以外のデータを用いて水理地質構造モデルの信頼性を確認する技術の開発

水理と地下水水質変化との整合性を確認する手法の適用を図り、水理地質構造モデルの信頼性を確認する上で本手法が有効であることを確認した。また、その際に地下水水質の初期状態の把握とその後の変動の把握などが重要になることを示した。

- 堆積岩の地質構造を推定する技術の開発

堆積プロセスおよび圧密プロセスを考慮して堆積岩の堆積構造を推定する基本ソフトウェアを開発し、本ソフトウェアの利点としてボーリング情報の少ない領域の地質構造推定に有効であること、地質学的知見に基づき合理的に推定されたパラメータの範囲を満たす複数の地質構造を構築することが、地質構造の不確実性を評価する上で有効であることを示した。

・地下水水質の設定

採水した地下水を地表で測定した地下水データについて熱力学的解析などに基づく補正により深部地下水水質の推定を行った。また、すべての地下水データをボーリング孔内で測定することは困難と考えられることから、このような地表で測定した地下水データに対して採水に伴う水質変化の補正が重要になることを示した。また、地下水水質を検討する上での鉱物情報の取得の必要性和有機物－微生物－鉱物－地下水といった複雑系としての評価の必要性を示した。

・物質移行の概念モデル選定およびパラメータ設定

- 新第三紀堆積岩中の亀裂の概念モデル

亀裂を含む新第三紀堆積岩と亀裂を含まない新第三紀堆積岩の岩石試料の室内透水試験を実施し、間隙率の異なる堆積岩においては、亀裂が卓越経路になる可能性が異なるとの知見が得られた。実際のサイトにおいて透水性に与える亀裂の影響を確認することの必要性とともに、亀裂の連結性についても検討する必要性を示した。

- トレーサー試験における不確実性の検討

トレーサー試験結果から安全評価に用いるパラメータを抽出する際には、トレーサー試験において亀裂中充填物質への拡散が短期的には卓越するため、その影響を適切に考慮した取扱いが重要になることを示した。

・分配係数の設定

分配係数の設定に際しては、岩石と地下水水質の把握が重要であり、特に後者については天然有機物の影響などが重要になる可能性のあることを S_e についての収着試験結果を例として示した。また、実際の地質環境を対象とする際には、得られるデータが限られる可能性があり、そのような場合に既存の収着データベースあるいは収着モデルな

どを利用して分配係数を推定する手法が有効であること、およびその際には評価対象とする環境条件と試験条件の差異を適切に把握し反映することの必要性を示した。

- ・コロイド，有機物の影響評価

コロイド，有機物の影響評価を行う際に必要となる5つの特性のひとつである地下水中における濃度の測定を行い測定手法の有効性を示すとともに，地下水中のコロイド特性は地下水流速，Eh，pHなどの影響を受けやすいため，できるだけ地下深部の環境を乱さずに地下水を採取する必要があること，また，有機物についても，コロイドレベルの大きさを持つ有機物が存在する可能性があるため，コロイド同様擾乱の小さい手法で地下水を採取する必要があることを示した。

- ・シナリオ解析，不確実性評価，生物圏評価，補完的安全指標，技術情報の管理

地質環境に対する理解の浅い段階への適用も意識しつつ，地質環境条件を一義的に定めることができない場合に対応可能なシナリオ解析手法の構築，不確実性をパラメータ分布として設定することやその影響を定量的に評価し重要性を分析する技術の整備，生物圏評価において地表での希釈効果などと密接に関係するGBIの候補の絞り込みと調査により得られる情報との対応に関する検討などを進めていることを述べた。また，技術情報統合システムの開発が，実際の地質環境を対象とした調査・研究の進展に伴う技術的な情報の増大や複雑化に対応するために必要であることを述べた。

- (b) 実際の地質環境を対象とした物質移行解析を行うために必要となる，地質環境の調査・評価から物質移行解析に至る一連の作業の枠組みを整理した。また，実際の地質環境を対象とした物質移行解析の大きな特徴のひとつである，地下水流動解析から得られる移行経路情報を物質移行モデルに反映する方法について検討し，複雑なモデルと簡略化したモデルを構築し，簡略化したモデルで複雑なモデルを近似する手法を提示した。

(ii) 反映内容

- ・安全評価に関する基盤技術および安全評価手法の実際の地質環境への適用に関して，具体的な事例を示すとともに，適用性や信頼性を向上させるための留意事項や課題を整理した。
- ・地質環境の調査・評価から物質移行解析に至る一連の作業の枠組みを示すとともに，その作業の境界部分として重要な，地下水流動解析から物質移行経路を抽出し，その不均質性などを物質移行解析に取り込む手法を例示した。

6.2 今後の課題

今後，地層処分のセーフティケースの作成に必要な地質環境の調査，処分場の設計および安全評価に関するデータや情報，および専門家の判断根拠などを知識という形でわが国共通の資源とするために，安全評価に関する技術基盤の強化を進めるとともに，知識の拡充と具体化，統合化の方法論の開発およびそれに基づく知識ベースの構築を進める。

安全評価に関する技術基盤の強化については，地層処分基盤研究施設や地層処分放射化学研究施設などの研究施設において，核種移行などに関するデータの拡充，現象理解の深化に基づくモデルの高度化を図る。また，安全評価への反映の筋道を明らかにしながら個別研究課題を進めるとともに，それらの連携を強化し，総合技術としての安全評価技術を向上させる。さらに，これらの技術の開発・整備に，深地層の研究施設計画で得られる地質環境データなどを活用していくとともに，全体システムモデルの整備も図りながら，個別の技術のみならず安全評価技術全体としての深部地質環境での適用性確認を行う。

知識の統合化に関する方法論の開発および知識ベースを管理する知識マネジメントシステムの開発と整合をとりつつ，上述のデータ，モデル，手法，それらの適用性などの安全評価に関する技術的成果，および深地層の科学的研究の成果やすでに開発を進めている熱力学データベースなどを知識として整理し，それらを知識ベースとして体系化する。これにより，

事業の進展に応じて研究開発成果や科学技術的進歩を反映した最新の知識を提供することを可能とする。また、関係機関の研究開発成果もこの知識ベースに統合し、地層処分技術に関する研究開発における中核機関としての役割を果たす。

付録表

第2次取りまとめ以降の進捗

- (1) 放射性元素の熱力学データベースの整備 (2.1)
- (2) 収着・拡散データベースの整備 (2.2)
- (3) 地上からの調査段階における地下水流動評価手法の整備 (3.1.1)
- (4) 亀裂を対象とした水理・物質移行現象の理解 (3.1.2)
- (5) 堆積岩中の水理・物質移行現象の理解 (3.1.3)
- (6) 地下水・間隙水水質形成モデルの高度化 (3.2)
- (7) ガラスの長期浸出挙動に関する研究 (3.3.1)
- (8) 核種の溶解現象に関する研究 (3.3.2)
- (9) 核種の収着・拡散現象に関する研究 (3.3.3)
- (10) コロイドの影響評価モデルの開発 (3.4.1)
- (11) 天然有機物・微生物の影響評価モデルの開発 (3.4.2)
- (12) 生物圏評価モデルの高度化 (3.5)
- (13) シナリオ解析技術の高度化 (4.1.1)
- (14) 天然現象影響評価技術の高度化 (4.1.2)
- (15) 不確実性評価技術の高度化 (4.2)
- (16) 技術情報の統合技術 (4.3)

(1) 放射性核種の熱力学データベースの整備 (2.1 節)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>(a) 重要元素の熱力学データ取得と評価 還元条件下における重要元素 (アクチニド IV 価, Se など) の熱力学データ整備</p>	<p>当時の最新の熱力学データの知見に基づき JNC-TDB を整備し、それに基づく溶解度評価を実施した。</p>	<p>第 2 次取りまとめの段階ではデータが少なかつたアクチニド IV 価の Np-OH-CO₃ 錯体について、実験データが拡充された。値のばらつきが認められた U, Np, Pu の含水酸化物固相の溶解度積および加水分解定数に関する熱力学データについて、実験データが拡充され、データの傾向性や系統性が確認された。</p>
<p>(b) 活量係数補正方法に関する情報収集と検討</p>	<p>当時の最新の熱力学データの知見に基づき JNC-TDB を整備し、それに基づく溶解度評価を実施した。 活量補正は変形 Davies の方法を用いた。 入手できたパラメータを用いて Pitzer モデルによる溶解度試計算を実施した。</p>	<p>第 2 次取りまとめの段階では整備されていなかった、高イオン強度に対応できる活量係数モデルである Pitzer モデルによる核種の溶解度計算を行なうためのデータベース環境整備を実施した。 イオン強度が 1 以下では Davies と Pitzer による活量係数補正方法の違いによる溶解度の差異は顕著ではないことが示された。</p>
<p>(c) 熱力学データベースの利用環境の向上および情報提供</p>	<p>公開技術資料の作成により透明性、追跡性を担保した。</p>	<p>第 2 次取りまとめで開発した熱力学データベース (JNC-TDB) および NEA-TDB を複数の地球化学計算コードで利用可能なフォームページの電子ファイルとして整備した。また、外部公開ホームページを通じ、データベースの国内外への公開を開始し、利用を促進した。2005 年 7 月時点でデータベース利用登録者は 300 名を越えた。</p>

(2) 収着・拡散データベースの整備 (2.2 節)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
(a) 文献調査による最新のデータ収集および収着データベースの更新	降水系地下水を中心とした分配係数や拡散係数の実測データの拡充およびデータベースを整備した。	第 2 次取りまとめのデータベースは 1998 年までのデータを収録したが、さらに 1999 年～2003 年までの最新の文献データを INIS 検索により収集、選定し、収着データベース (JNC-SDB) へ追加するとともに、データベースを更新した。これにより、安全評価における Kd 設定において、より幅広い地質環境に対応できるようになった。JNC-SDB は、熱力学データベース (JNC-TDB) とともに外部公開ホームページを通じ、国内外への公開を開始し、利用を促進した。2005 年 7 月時点でのデータベース利用者数は 300 名を越えた。
(b) 堆積岩での海水系地下水環境、アルカリリ環境におけるデータの拡充	降水系地下水を中心とした分配係数や拡散係数の実測データの拡充およびデータベースを整備した。	第 2 次取りまとめの段階ではデータが不足していた海水系地下水環境でのベントナイトに対する Cs, Se の収着データを取得し、データを拡充した。同様にデータの不足していた海水系地下水環境やアルカリリ環境下での砂岩および凝灰岩に対する Sn, Pb, Th の収着データ、砂岩および泥岩に対する Cs, Se の収着データを取得し、データを拡充した。
(c) データ取得方法の標準化に資する基盤情報整備		第 2 次取りまとめの段階では統一的な収着データ取得方法が提案されていなかったが、原子力学会標準委員会の活動に積極的に寄与し、収着データ取得に関する標準的手法が提案された。これにより今後の収着データ取得にあたっての品質保証に関する基盤が整備された。
(d) 収着データの信頼度付与のための手法開発		JNC-SDB には様々な条件で得られた収着データが存在するが、第 2 次取りまとめの段階では、個々のデータの信頼度の検討までは行っていないかった。第 2 次取りまとめ以降、JNC-SDB を用い個々のデータに対する信頼度を付与するための指標を検討し、幾つかの核種を例に指標の適用性について検討した。現段階では、指標の適用性について検討中であるが、このような試みにより、今後、信頼度の高いデータをもとにした安全評価における Kd 設定に反映できる。

(3) 地上からの調査段階における地下水流動評価手法の整備 (3.1.1 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
(a) 亀裂ネットワークモデルの高度化 (3.1.1.1 項)	亀裂ネットワークモデルを用いて100メートルスケールの岩盤を対象としたフレックススケースモデル構築のための検討を実施した。	比較的広範な領域での地下水流動および物質移行評価を対象としたモデル化に必要な基本的なツールとして、亀裂ネットワークモデルに等価不均質連続体モデルへの近似機能、入れ子モデル化の機能などを付加した。本モデルは、物質移行評価上重要な移行経路となる亀裂中の地下水流速などの局所的な地下水流動特性を直接的に評価できるという利点があり、瑞浪の深地層の研究施設計画などで実施してきた決定論的なモデルの補充モデルとして活用することができる。
(b) 実測された間隙水圧データによる水理地質構造の推定 (3.1.1.2 項)		堆積岩地域における水理地質構造モデルの構築に関する検討の一環として、幌延地域で観測されている間隙水圧データを用いた地下深部の透水係数分布の推定を試行した。限定された調査試験データから、対象地域の地下水流動特性に影響を及ぼす可能性がある要因を抽出し、調査や解析にフィードバックするなどの利用が可能と考えられる。
(c) 地下水水質変化を考慮した水理地質構造モデルの信頼性向上 (3.1.1.3 項)	わが国の地質環境を幅広く捉える目的から、特定の地域を対象とした地下水流動評価ではなく、簡略かつ保守的に、母岩とその下流側に設定した断層中を地下水移行経路として設定した。	水理地質構造モデルの信頼性を向上させるための手法として、地下水の端成分の混合割合を求めるとともに、バックワードトラッキング法を組み合わせて観測点における地下水組成変化を予測する手法を構築し、スウェーデン・エスポ地下研究施設とその周辺地域への適用を試行した。
(d) 堆積プロセスを考慮した地質構造推定技術の開発 (3.1.1.4 項)		地上からの調査段階における地下水流動評価手法の整備の一環として、幌延の深地層の研究施設計画でのボーリング調査データなどに基づいて、堆積岩の形成過程である堆積プロセスを考慮した地質構造の推定手法を検討し、基本ツールを提示した。堆積プロセスを表すパラメータを地質情報から想定される範囲で変化させ、複数の岩相分布を作成することなどにより、地質構造モデルを推定する際の不確実性の評価に活用できる可能性がある。
(e) 地下水流動解析結果の不確実性定量化技術の開発 (3.1.1.5 項)		地下水流動評価結果として得られる移行経路長に与える透水係数分布などの不確実性の影響を定量的に求めることができる確率有限要素法を中心とした手法を提案するとともに、モンテカルロ法との比較検討を行った。本手法およびモンテカルロ法にはそれぞれ長所・短所があり、不確実性の定量化の状況や不均質性の程度などに応じて、両者を補完的に活用することにより、地下水移行経路の不確実性の定量化が可能と考えられる。

(4) 亀裂を対象とした水理・物質移行現象の理解 (3.1.2 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>(a) 天然亀裂を対象とした水理・物質移行特性データの取得 (3.1.2.1 項)</p>	<p>母岩に対するレフアレンスケースモデルとして、岩盤中に分布する亀裂の透水量係数の不均質性を分布確率として考慮し、均質な 1 次元平行平板モデルを重ね合わせた手法を採用した。</p>	<p>天然の亀裂を含む 50 センチメートルスケールの比較的大きな試料を対象とした亀裂の水理特性データを取得した。1 ケースではあるが、天然亀裂のうち交差部が他の部分より透水性が高いことを示した。</p>
<p>(b) 不均質な開口幅分布が水理・物質移行特性に与える影響検討のための基盤技術の整備 (3.1.2.2 項)</p>	<p>個々の亀裂中の透水量係数の不均質性や充填物質は直接考慮せず、簡略かつ保守的な 1 次元平行平板モデルによる安全評価を実施した。</p>	<p>亀裂内に不均質に分布する開口幅が亀裂中の水理・物質移行に与える影響などの現象理解に必要な基盤技術の整備として、室内トレーサー試験方法の改善、開口幅測定技術の開発、LGA 法によるモデル化の検討を行った。これらの技術は、亀裂を対象とした水理・物質移行モデルのひとつである 1 次元平行平板モデルやそのパラメータ値の設定方法の信頼性向上に寄与する。</p>
<p>(c) 亀裂内充填物質や透水量係数などの不均質性が水理・物質移行に及ぼす影響の検討 (3.1.2.3 項)</p>	<p>地下水流動や物質移行の評価に必要なモデルやパラメータ値を、文献や実際の調査試験データに基づいて妥当性や保守性を確認し、設定した。</p>	<p>亀裂の透水量係数の不均質性や充填物質などの亀裂内の不均質性の影響を解析的に検討するとともに、物質移行パラメータをトレーサー試験に基づいて評価する際の充填物質の影響を考慮する必要性について、スウェーデン・エスポ地下研究施設などでのデータを活用して事例的に検討した。</p>
<p>(d) 原位置トレーサー試験より得られる水理・物質移行特性値の不確実性評価 (3.1.2.4 項)</p>	<p>1 次元平行平板モデルを用いた核種移行解析コードにより、原位置で実施されたトレーサー試験から各パラメータ値の同定および、その値の不確実性を評価する方法について検討した。本手法は、地下研究施設などで実施された試験データに基づく水理・物質移行特性値の妥当性の検討に活用できる。</p>	<p>1 次元平行平板モデルを用いた核種移行解析コードにより、原位置で実施されたトレーサー試験から各パラメータ値の同定および、その値の不確実性を評価する方法について検討した。本手法は、地下研究施設などで実施された試験データに基づく水理・物質移行特性値の妥当性の検討に活用できる。</p>

(5) 堆積岩中の水理・物質移行現象の理解 (3.1.3 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>堆積岩中の水理・物質移行現象の理解</p>	<p>核種移行評価において、亀裂ネットワークモデルと連続体モデルそれぞれの解析結果を重ね合わせた評価を実施した。</p>	<p>幌延の深地層の研究施設計画で取得された堆積岩試料を用いた室内試験の結果から、間隙率の高い声問層では、亀裂の有無による透水性の差は顕著でなかったが、間隙率の低い稚内層については、粒子間隙よりも亀裂が卓越した水みちとなる可能性が高いことが示唆された。このことから、実際の堆積岩における物質移行現象のモデル化にあたっては、亀裂部と岩石基質部それぞれの水理・物質移行特性を考慮することが必要である。本件で得られた結果は、堆積岩を対象とした物質移行評価での解析モデルの検討に利用できるものと考えられる。</p>

(6) 地下水・間隙水水質形成モデルの高度化 (3.2 節)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>(a) 深部地下水データの信頼性評価および深部地下水水質推定手法の検討</p>	<p>化学平衡論に基づく地下水水質形成モデルを構築し、地質環境を特定しない地下水水質の設定を行った。</p>	<p>実際の地質環境における地下水地球化学モデルの適用性確認として、茂原地域の泥質岩中海水系地下水や幌延地域の海水系地下水を例に、一般的に考えられている地球化学的知見に基づき、地下深部で採水され、地表で測定された pH や Eh などの信頼性について検討した。また幌延地域の地下水を例に、地表で測定・分析された値をもとに地球化学モデルにより地下深部での地下水水質を推定する手法を提案した。この手法の適用性については現段階では確認されていないため、今後、原位置で測定された値との比較により検証していく必要がある。</p>
<p>(b) 間隙水水質の時空間変化に係わる測定手法の開発, データ取得およびモデル化</p>	<p>バッチ試験に基づいた間隙水水質形成モデルを構築し、圧縮ベントナイト中の間隙水水質の設定を行った。</p>	<p>第 2 次取りまとめの間隙水化学モデル検証の一環として、圧縮ベントナイトを用い、海水系やアルカリ環境での間隙水 (pH, イオン濃度) の測定を行ない、間隙水の時空間変化を明らかにした。また、天然のベントナイト鉱床における間隙水の空間分布に関するデータを取得した。以上により、間隙水化学モデルの信頼性が向上するとともに、間隙水の時空間変化に関する室内および天然でのデータが取得された。</p>
<p>(c) 高アルカリ条件下での緩衝材の変質に関係する鉱物などの熱力学データベースの開発</p>	<p>地下水・間隙水水質の設定で必要となる鉱物などの熱力学データベースを整備した。セメント系鉱物については既存文献に基づきデータ収集を行った。</p>	<p>第 2 次取りまとめの段階では整備されていなかったセメント系鉱物を含む熱力学データベースを整備し、支保工としてセメントが用いられた場合の緩衝材間隙水水質の推定や緩衝材変質評価のための基盤を構築した。</p>

(7) ガラスの長期浸出挙動に関する研究 (3.3.1 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>(a) ガラス浸出試験、表面変質層の特性評価およびモジュール化</p>	<p>定常の長期溶解速度データに基づきガラス溶解を評価した。</p>	<p>アルカリ条件下でのガラス浸出試験を実施し、ガラス表面変質層の二次珪物化についての知見を得た。ガラス (P0798) はアルカリ水溶液および脱イオン水との反応により珪物に変質する。主な生成珪物は、pH11 以上の条件では方沸石、pH11 以下ではスメクタイトであり、また、同時に非晶質シリカ (SiO₂(am)) やゲル相も生成する。</p>
<p>(b) 表面変質層－核種相互作用データ取得</p>		<p>pH11 以下の条件では、スメクタイト生成の有無に拘らずガラス溶解／変質速度は遅く、可溶性元素と水 (H₃O⁺: hydronium ion) の相互拡散過程に律速される。水和変質モデルによる解析において、可溶性元素または水の拡散係数 Di は 10⁻²² ~ 10⁻²¹ m² s⁻¹ (温度 60 °C ~ 120 °C) であった。その温度依存性から活性化エネルギーは 50 kJ/mol となった。溶解／変質が進行するにつれて、拡散係数の値は小さくなるが、これはガラス表面に珪物 (スメクタイト) を含む析出層が成長し、拡散を抑制するためと考えられる。ベントナイト共存下においても、ガラス固化体の溶解／変質は可溶性元素と水の相互拡散に律速されて進行する。この場合、ガラス表面析出層の成長による拡散の抑制は顕著ではなく、析出層はベントナイト側に成長する。溶出してきた核種の一部は変質層または周囲の圧縮ベントナイトに収着する。</p>
<p>(c) 地下深部の環境におけるガラス変質評価 (ナチュラルアナログ研究)</p>	<p>ガラスの長期健全性に関して、長期評価の信頼性の傍証として露頭や地表近くで採取された火山ガラスを用いて例示した。</p>	<p>南関東の地下深部のボーリングコアを用いて、火山ガラスの変質調査を実施した結果、横浜孔の深度 2,000 m 付近では温度が約 70 °C に達しており、全て変質し、二次珪物としてクリノプチロール沸石とモンモリロナイトが生じていた。</p>

(8) 核種の溶解現象に関する研究 (3.3.2 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
(a) アクチニド元素などに関する溶解度制限固相の変遷に関する研究	Th などのアクチニド元素の溶解度制限固相は長期的には、より安定な結晶固相に変化する可能性があるが、保守的な評価として非晶質固相を溶解度制限固相とした評価を行った。	U について溶解度制限固相の変遷に関する実験データを蓄積し、低 pH での非晶質固相の結晶化に伴う溶解度の変化を実験的に確認した。
(b) 共沈モデルの取得と固溶体モデル適用性の検討	ガラス固化体中の Ra/Ca 比に基づき地下水中に溶解する Ra 濃度を簡易的に見積もった。	Ra のアナログ元素として Ba を用いた共沈試験を実施して元素分配比を用いたモデルと非理想固溶体モデルによる解析を実施し、共沈反応機構を考察した。アクチニド元素の固溶体現象に関する実験的研究に基づき、 $U_xNp_{1-x}O_2(am)$ の溶解挙動は理想固溶体モデルにより表現できることを示した。

(9) 核種の収着・拡散現象に関する研究 (3.3.3 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>(a) 圧縮ベントナイトへの核種の収着現象に関するメカニズムの理解 ・岩石中への核種の収着現象に関するメカニズムの理解</p>	<p>緩衝材については、見かけの拡散係数に基づき分配係数を設定した。実験条件と処分環境条件における化学種の差異などについては、一部定性的な議論を行った。岩石については、バッチ式収着試験の値に基づき設定した。実験条件と処分環境条件における化学種の違い、試料粉砕の影響などについては課題とした。</p>	<p>還元条件、炭酸共存系におけるアクチニド (Np) のベントナイトへの収着試験を行い、溶液条件の変化に伴う分配係数の変化は、溶液条件の変化に伴う溶存化学種の変化と溶存化学種ごとの分配係数の違いの組合せで説明できることを明らかにした。また、OECD/NEA 収着プロジェクトに参画し、熱力学的収着モデルの適用性や適用限界に関する知見を整理した。実際の地質環境として幌延地域の堆積岩を対象とした収着試験を実施し、Cs に対する収着モデルの適用性に関する検討を実施した。</p>
<p>(b) 圧縮ベントナイト中の核種の収着・拡散現象に関するメカニズムの理解 ・岩石中の収着・拡散現象に関するメカニズムの理解</p>	<p>緩衝材に対しては、単純な陽イオン、単純な陰イオン、その他の化学種に分け、実効拡散試験データから降水系ではそれぞれ異なる値を、海水系では同一の値を設定した。岩石に対しては、化学種は区別せず、室内試験などの実測データに基づき設定した。マトリクス拡散深さについて、レファレンスケースでは 10 cm と設定した。</p>	<p>緩衝材および岩石中の陰イオンの実効拡散係数のイオン強度依存性に関するデータ取得とその論理的考察を実施した。各種条件下における様々なイオンのベントナイト中の拡散の活性化エネルギーを導出し、拡散メカニズムに関する考察を行った。また、分子動力学および均質化解析手法を用いた、水およびイオンのベントナイト中の拡散シミュレーション手法を開発した。砂岩に対し、拡散から得られる Cs の Kd とバッチ式試験から得られる Kd の比較検討を行い、同じ条件であれば、比表面積補正によりほぼ一致する結果を得た。花崗岩基質部への拡散深さを調べるための室内試験の手法を検討し、データを取得した。その結果、ヨウ素が 20 cm 以上拡散侵入する可能性を示した。</p>
<p>(c) 収着、拡散に及ぼすオオバ一パック腐食生成物の影響確認</p>	<p>還元環境維持性能を期待し、核種移行評価において、全ての放射性元素は、地下水および腐食生成物によりもたらされる還元環境に平衡であるとして評価した。</p>	<p>腐食生成物 (マグネサイト) による Np(V) の還元、収着挙動を調べ、腐食生成物により Np が還元されることを確認した。また、腐食生成物共存下での緩衝材中での Np の拡散挙動を調べ、Np の化学形態 (存在形態) と拡散挙動との関係を明らかにした。</p>

(10) コロイドの影響評価モデルの開発 (3.4.1 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
(a) コロイドの濃度, 安定性および移行性の評価	<p>コロイドは, フィルター効果により, 緩衝材中を移行できず, また, 亀裂によるフィルター効果により, 移行が抑制されると推察した。岩盤中の地下水では, 緩衝材表面から生成するベントナイトコロイドや天然コロイドが核種移行に影響を与える可能性がある。このうちベントナイトコロイドは, 地下水流速が $10^{-5} \sim 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ という環境でない限り, 生成しにくい。</p> <p>コロイドの影響評価 ((c)参照) に当たっては, 天然コロイドの濃度を文献値に基づき 10^3 kg m^{-3} と仮定した。</p>	<p>緩衝材のフィルター効果によって 1 nm のコロイドをろ過することができ緩衝材の有効粘土密度として, 1.5 Mg m^{-3} を試算した。</p> <p>緩衝材からのベントナイトコロイドの生成について, ベントナイト粒子の熱運動に起因するコロイド生成の可能性を示した。また, モデル計算や採取した地下水を対象とした実験に基づき緩衝材外側でのベントナイトコロイドの安定性を評価した結果, イオン強度によっては, ベントナイトコロイドが存在するとして検討が必要になる可能性のあることを示した。</p> <p>採取した地下水中のコロイドについて, ろ過を適切に行うことにより, 地下水の化学組成の濃度分析とコロイド濃度を推測する方法を提示した。</p>
(b) コロイドへの核種収着性およびその不可逆性の評価	<p>コロイドの影響評価 ((c)参照) に当たっては, 核種のコロイドに対する線形・瞬時・可逆収着を仮定し, 文献値に基づき, 核種のコロイドへの分配係数を一律 $1,000 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ と仮定した。</p>	<p>ベントナイトコロイドに対するCsの分配係数を取得するとともに, その収着は可逆的であるとの知見が得られた。また, Csのベントナイトコロイドに対する収着性は, 粉末状ベントナイトより大きいことを確認した。</p>
(c) コロイド影響評価モデルの開発	<p>核種のコロイドに対する線形・瞬時・可逆収着を仮定し, 亀裂性媒体を対象としたモデルで, 簡易的にコロイドの影響評価を実施したところ, 最大線量はレファレンスケースの数倍程度であった。</p>	<p>核種移行に及ぼすコロイド影響を, 速度論的核種収着・脱着および亀裂性媒体と多孔質媒体を考慮して評価できるモデルCOLFRAC-MRLを提示した。室内カラム通水試験および原位置核種移行試験結果をCOLFRAC-MRLを用いて解析し, このモデルの妥当性を確認した。また, 地下水流速がかなり速い場合には核種の収着・脱離速度を考慮する必要があり, 地下水中のコロイド濃度が核種移行挙動に大きく影響するとの解析結果が得られた。</p>

(11) 天然有機物・微生物の影響評価モデルの開発 (3.4.2 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
(a) 有機物の濃度および移行性の評価	<p>深部地下水中の有機物濃度は数 mg dm⁻³ 程度との文献値を考慮した。</p> <p>分子量の大きな有機物は、緩衝材のろ過効果により緩衝材中を移行できないとした。</p>	<p>採取した地下水中の有機物濃度の実測データを JIS あるいは学会などにより示された標準的な方法を組み合わせて取得した。</p> <p>圧縮ベントナイト中では、淡水条件に比べて海水条件下の方が有機物は透過しやすく、乾燥密度 1.2 Mg m⁻³ のクニゲル V1 によるフィルタ一効果の限界分子量は 450,000 以下に存在すると考えられるとの知見が得られた。</p>
(b) 有機物と核種の錯形成能とその不可逆性の評価およびモデル化	<p>核種と有機物との錯生成は、炭酸などのほかの配位子との競合を考慮すると、溶存化学種の変化は大きくないとした。</p> <p>核種の収着に与える影響は、分配係数の不確実性としてとらえるべきとした。</p>	<p>Th(IV)および Np(IV)について、フミン酸共存下で溶解度試験を行い、見かけの安定度定数を取得した。Th(IV)について、溶液中の炭酸濃度が約 0.02 mol dm⁻³ より高い場合、10 mg dm⁻³ 程度のフミン酸の溶解度に対する影響は有意でない可能性を示した。</p> <p>Np(IV)とフミン酸の錯形成において、不可逆的な錯形成が存在する可能性を示した。一部の核種—フミン酸相互作用モデルの比較を実施した。</p>
(d) 微生物影響評価モデルの概念検討	<p>微生物による影響としては、酸化還元反応への影響に起因する放射性核種の移行挙動などへの影響、微生物の活動により生成される可溶性・可動性有機物の増加、微生物自身の移動による影響などが想定されるが、具体的な影響評価は行わなかった。</p>	<p>核種が微生物に取り込まれるようなコロイド的な挙動を仮定した核種移行解析を実施した。微生物濃度によっては、核種移行が促進される可能性を示唆した。</p>

(12) 生物圏評価モデルの高度化 (3.5 節)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
(a) モデル化手法の検討	レファレンスバイオアスの考え方に基づき、生物圏評価モデル (GBI ごと) の構築とパラメータの設定を行い、核種移行解析から得られる移行率を線量に換算する「線量への換算係数」を評価した。	希釈などの効果に大きく係わる GBI の設定を実際の地環境に 応じて実施するための着眼点や考え方、およびその実施と関係づ けるべき調査項目を概略的に検討し整理した。 海域を GBI としたモデル、あるいは気候変動を考慮したモデル などを拡充した。
(b) パラメータの重要度分 析と現在の設定状況の 整理	核種ごとに百を超えるパラメータの値を、既存 の文献情報に基づき設定した。	モンテカルロシミュレーションと感度解析を組み合わせること により、重要なパラメータを抽出した。 さらに、重要なパラメータに関して現在の設定状況を整理し、実 際の地環境の特徴に応じてどの生物圏評価パラメータに関す る調査研究に優先的に取り組むべきかなどの選択と判断を総合的 かつ効率的に行う手法、およびそれらの検討の材料となる情報の 例を提示した。
(c) 天然放射性核種の濃度、 フラックスの検討	第 2 次取りまとめの安全評価の結果得られる核 種の河川中濃度や地下水濃度と天然放射性核 種の濃度を比較した。	線量およびリスク以外の指標を用いた検討に利用可能な基盤的 な情報として、天然放射性核種の濃度とフラックスデータを取 集・整理し、第 2 次取りまとめ段階よりも情報を充実させた。こ れらの情報は国際共同研究などで報告することにより、利用可能 な形とした。 水循環を物質循環の基本とし、集水域に着目した天然放射性核種 のフラックスの算出方法を検討した。

(13) シナリオ解析技術の高度化 (4.1.1 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
シナリオ解析技術の高度化	国際的なコンセンサスが得られている体系的なアプローチを採用して、FEP の整理およびシナリオの設定を行った。	<p>第 2 次取りまとめ段階でのシナリオ解析に関する作業が複雑で時間を要するものであった主要な原因のひとつである FEP の相関関係の整理に対して、</p> <ul style="list-style-type: none"> 相関関係をマトリクス形式で表現すること FEP に基づく積み上げのアプローチに加えて、安全機能を用いて結果側からの視点を導入すること <p>により相関関係を構造化して表現する手法を構築し、さらにこの手法を計算機ツール上に展開することにより、相関関係の十分性の確保、作業の効率化、および作業のアップロード・内容・判断の記録の集約などの観点から FEP の取扱い技術を向上させた。また、本検討を通じて、FEP や安全機能が有する複雑な相関関係を構造化して取り扱うことが、相関関係の表現のみならず作業の実施面においても有効であることを確認した。</p>

(14) 天然現象影響評価技術の高度化 (4.1.2 項)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
天然現象影響評価技術の高度化	天然現象の発生をあえて想定し、それにより地層処分システムが被る特徴的な影響を、簡略かつ保守的なシナリオやモデルとして表現し評価を実施した。	<p>評価に関する一連の作業を、天然現象研究と影響解析の専門家が適切に分担し、かつ必要な部分で連携・協働できる仕組みを取り入れ、シナリオの現実性、評価内容の追跡性・整合性・透明性の向上を図ることができ、作業フレームを構築した。それを用いることにより、場の特徴（発生様式、影響様式、地域性など）を適切に取り込みつつ、過度な保守性を排したより現実的な天然現象影響評価を行うことを可能とした。</p>

(15) 不確実性評価技術の高度化 (4.2 節)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>(a) パラメータの分布設定技術の高度化 (4.2.1 項)</p>	<p>サイトを特定せずに、幅広い地質環境の特徴を考慮して、既存情報に基づき、データの不確実性を各々のパラメータの最大値および最小値として決定論的に表現した。</p>	<p>第 2 次取りまとめでは検討の対象としていなかった、実際の地質環境の特徴を考慮したパラメータの分布設定技術について検討した。具体的には、整理した設定手法のひとつである誘出法について、実際の地質環境の特徴を考慮した分布設定を試行することにより、誘出法の手順の具体化や留意点の抽出などを行った。これららの検討を通じて、パラメータの分布設定に関する情報を変動要因という観点から選別し専門家間で共有すること、およびパラメータの分布設定に関係する情報を体系的に整理しておくことが分布設定の妥当性を向上させるために有効であるとの知見を得た。</p>
<p>(b) データ不確実性の影響評価技術の高度化 (4.2.2 項)</p>	<p>データ、モデル、シナリオの不確実性の影響を決定論的に評価するために、レファレンスケースの結果と設定した各解析ケースの結果との比較・分析を通じて、感度の大きな不確実性を把握した。さらには、その感度の大きな不確実性の組合せを、システム性能の総合的評価で考慮した。</p>	<p>第 2 次取りまとめでは検討の対象としていなかった、複数のデータの不確実性が同時に寄与する場合における不確実性の影響を網羅的かつ効率的に解析することが可能な核種移行モデルを構築し、モンテカルロシミュレーションを実施した。これらの検討を通じて、決定論的な手法と確率的な手法を相互に補完的に用いることができる見通しを得た。さらには、モンテカルロシミュレーションの結果に基づき、データの不確実性に伴う結果への影響の程度を把握するための手法として、従来の重回帰分析に加えて、クラスタ分析、決定木分析などの手法を分析の目的に応じて使い分けられるいは組合せることを試みた。これららの検討を通じて、分析の目的に応じて分析手法を使い分けられるいは組み合わせることの有効性を確認した。</p>
<p>(c) モデル不確実性の影響評価技術の高度化 (4.2.3 項)</p>	<p>レファレンスケースで用いたモデルに対して、主にパラメータ設定などを変更することで、影響を与える可能性のあるいくつかのプロセスを考慮した検討を行った。</p>	<p>第 2 次取りまとめで構築した人工バリア中核種移行解析モデルにおいて、簡略化されたあるいは保守的に効果を無視したプロセスに着目し、掘削影響領域での核種の移行遅延およびガラス固化体の割れによる表面積の増加のガラス溶解への影響についての代替的なモデルを検討した。これらの検討を通じて、第 2 次取りまとめにおける評価の保守性を定量的に把握するとともに、掘削影響領域での移行遅延やガラス固化体の溶解に関する現実的な評価がシステム性能の頑健性を高める可能性を示した。</p>

(16) 技術情報の統合技術 (4.3 節)

課 題	第 2 次取りまとめ	第 2 次取りまとめ以降
<p>技術情報統合システムの開発</p>	<p>異なる分野の間で情報の流れを整理し、明らか な不整合を回避しながらそれらの情報の統合 を行った。 しかしながら、すべてにわたって必ずしも密な 連携が実現できただけではなく、特にサイトを 特定しない研究開発の段階であることから、実 際の地質環境を対象にした各分野の研究の集 約については課題とした。</p>	<p>研究の進捗および分野内や分野間での連携の進捗により、技術的 な情報の増加や情報の受け渡しの複雑化などが生ずることに伴 う情報共有や管理の困難さ、情報の不整合の発生などの問題に対 処・支援できる環境の整備として、</p> <ul style="list-style-type: none"> - 技術的な情報を研究の流れに沿って体系的に関係づける など、使いやすい形で統合的に管理すること - 研究成果のみではなく研究成果に関する背景情報などの 補足的な情報も一括管理することにより、研究成果利用 時の整合性を確保すること - 電子メールや掲示板の活用による情報の登録や更新の周 知、あるいは質問などによるコミュニケーションの促進 などにより、情報共有の場を提供すること <p>などの機能を特徴とするシステム（技術情報統合システム： JGIS）を開発した。</p>

用語の説明

アクチニド

アクチニウム (Ac) 以降の原子番号 89 番から 103 までの元素で Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf, Es, Fm, Md, No, Lr のことをいう。IUPAC (国際純正および応用化学連合) では、これら元素をアクチノイド(actinoid)と呼ぶことを提案したが、歴史的経緯から現在ではアクチニドと読んでも良いことにしている。すべて放射性元素であり、Np 以降は人工的につくられた元素である。これら元素の化学的性質は、f 殻が満たされていく電子配置を持つため、ランタニド元素と化学的性質が類似している。Ac, Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm は、原子力発電所から発生する使用済核燃料の再処理によって生じる高レベル放射性廃棄物中に含まれており、半減期が極めて長く α 線を出す核種が多く存在するため、その地層処分の安全評価において着目されている。処分場における化学的挙動は、酸化還元状態に強く依存しており、価数が同じであれば互いに非常に良く似た性質を示す。(廃棄物処分・環境安全用語辞典から引用)

安全機能

地層処分の長期的な安全性を確保するために多重バリアシステムが有する機能。第 2 次取りまとめでは、ガラス固化体に期待する安全機能、緩衝材に期待する安全機能および母岩に期待する安全機能を整理している。

安全評価

地層処分システムが安全上受け入れられるものか否かを判断するため、システムの将来挙動の予測を踏まえた人間とその生活環境への影響に関する解析結果を放射線の影響を表す適切な線量などの指標を用いて示し、安全基準と比較する。なお、安全評価において実施する一連の解析を安全評価解析という。

H17 取りまとめにおいては、安全評価および性能評価に関する研究全般を総称して安全評価という表現を用いている。

なお、性能評価とは、地層処分システム全体、あるいはその要素である個別システムが有する機能について解析した結果を適切な基準と比較し、その性能について定量的に評価することをいう。解析の対象が地層処分システム全体で、比較の基準が安全性に関するものである場合には、性能評価は安全評価と同義である。(専門部会報告書に一部加筆)

移行

岩石媒質あるいは、その他の固体物質を通過して物質が移動すること。たとえば放射性核種の岩盤中の移行。(国際原子力機関放射性廃棄物管理用語集から引用)

FEP

地層処分システムに影響を及ぼすと考えられるシステムの特質(Feature)、そこで生ずる事象(Event)や過程(Process)をいう。

オーバーパック

ガラス固化体を包み込み、ガラス固化体に地下水が接触することを防止し、地圧などの外力からガラス固化体を保護する容器。人工バリアの構成要素の一つ。候補材料は炭素鋼などの金属である。(専門部会報告書から引用)

開口幅

岩盤不連続面を特徴づけるパラメータの一つ。開口している割れ目の間隙幅で表す。(土木用語辞典より)

実際の亀裂の開口幅は一定ではなく亀裂内で不均質な分布を示す。幾何学的開口幅は、亀裂上下面の凹凸形状測定や亀裂断面における開口幅の直接測定などにより得られる。水理学的開口幅は、水理試験に基づく透水量係数から平行平板モデルを仮定した三乗則を用いて求められる。物質移行開口幅については、トレーサー試験から実流速を説明する間隙幅として求められる。

拡散（拡散係数）

溶液中の溶質が高濃度側から低濃度側へ濃度勾配を駆動力として移行する現象を言う。ベントナイトや岩石の間隙中を拡散する場合においては、固相への収着量を含む媒体全体での濃度分布およびその時間変化から、フィックの法則に従って求められる拡散係数を見かけの拡散係数 D_a と呼ぶ。これに対し、透過拡散試験により、定常状態において、単位時間、単位面積あたりの媒体を透過して出てくる溶質量を測定することで求められる拡散係数を実効拡散係数 D_e と呼ぶ。

核種

原子核中の陽子の数と中性子の数によって決まる原子核の種類をいう。核種のうち、放射能を有するものを放射性核種と呼ぶ。

H17 取りまとめでは、多くの場合、放射性核種を総称的に核種と記載している。

ガラス固化

再処理の過程において使用済燃料から分離される高レベル放射性廃液を、ガラス繊維と一緒に高温で加熱することにより水分を蒸発させるとともに非晶質に固結（ガラス化）し、物理的・化学的に安定な形態にするプロセス。廃液はステンレス製の堅牢な容器（キャニスタ）に閉じ込められた状態でガラス固化され、人工バリアの構成要素のひとつであるガラス固化体となる。ガラス固化体は放射性物質を安定な形態に保持し、地下水に対する耐浸出性に優れることが特徴。（専門部会報告書から引用）

緩衝材

オーバーパックと岩盤の間に充填し、地下水の浸入と放射性物質の溶出・移行を抑制するもの。さらに岩盤の変位を物理的に緩衝するクッションの働きや、地下水の水質を化学的に緩衝して変化を抑える働きをもつ。人工バリアの構成要素の一つ。候補材料はベントナイトなどの粘土である。

感度解析

現象を解析するモデルは、いくつかのパラメータとそれに対応する因果関係などから構成されるが、その中で支配的と考えられるパラメータ値を変化させることによって、解析結果（例えばシステムの挙動）がどの程度変動するかを定量的に調べる方法。これにより、対象とするモデルを構成するパラメータの重要度を判断することができる。（専門部会報告書から引用）

亀裂ネットワークモデル

亀裂（割れ目）を含む岩盤中での地下水および物質の移行経路を表現するモデルの一つ。まず岩盤中に存在する個々の亀裂を表現するモデルを作成し、それに基づき個々の亀裂から構成されるネットワーク状の移行経路を表現するモデルを作成する。（専門部会報告書から引用）

結晶質岩

マグマが冷えて固まってできた火成岩（例：花崗岩）および既存の岩石が熱や圧力によって変化してできた変成岩（例：結晶片岩、片麻岩）をいう。

原位置

地下でのあるがままの状態を意味し、地層処分場を建設する場と本質的に同等な地質環境のこと。(廃棄物処分・環境安全用語辞典(1999)から引用)

コロイド

溶存状態(分子)よりも大きく懸濁状態よりも小さな粒子サイズを有する物質の状態。コロイド粒子は 10^{-6} ~ 10^{-3} mm(1nm~1 μ m)の大きさを持ち、水などの液体中に浮遊し、容易には沈まない。(IAEA: Radioactive Waste Management Glossary: 2003 Edition から引用)

コロイドろ過(フィルター効果)

飽和圧縮したベントナイトが有する微細な間隙構造により、コロイド粒子がトラップされ、コロイドの透過が防止されること。

酸化還元電位

地下水などの酸化還元状態を表す。酸化還元電位が高い地下水ほど、一般に物質を酸化・溶解する能力が大きい。地層処分の観点からは、オーバーパックスの腐食速度や核種の溶解量などを支配する条件として、重要な地下水の地球化学特性となる。

地下水は、土壌や岩石中に含まれる鉱物や有機物と反応することにより、還元されていくため、一般には、深部にいくにしたがって地下水の酸化還元電位は低くなると考えられる。

シナリオ

放射性廃棄物が人間環境に及ぼす影響を評価する観点から、地層処分システムの処分直後の状態をもとに、長期間のうちにその状態を変化させる可能性のある一連の現象を想定し、これらを組み合わせて地層処分システムの長期挙動を描いたもの。シナリオを作成する目的は、地層処分システムの長期挙動を時系列的に記述することにより、地層処分システムの性能を解析するための道筋を規定し、その解析に必要なモデルの開発やデータ収集の枠組みを与えることである。(専門部会報告書から引用)

収着(分配係数)

固体表面と原子、分子あるいは粒子との反応。一般に、収着には、吸収(固体中の空隙内で広く生じる収着)および吸着(空隙の無い固体表面でおこる収着)が含まれる。収着現象は大きく、化合物の生成を引き起こすと同程度の力(化学結合)による化学吸着とファンデルワールス力などの弱い分子間力による物理吸着に分けられる。

分配係数は、特定の化学種の平衡 2 相間の分配の定量的尺度。環境研究において、その値は、土壌あるいは埋め戻し材が放射性核種の移行をどのくらい遅らせるかを予測するのに用いられる。(IAEA: Radioactive Waste Management Glossary: 2003 Edition, 岩波理化学辞典第 5 版に一部加筆および国際原子力機関放射性廃棄物管理用語集から引用)

人工バリア

ガラス固化体、オーバーパックスおよび緩衝材の総称。多重バリアシステムの構成要素の一つ。

水理特性

透水係数や比貯留係数といった透水性などの岩盤の水理に関する場の状態を表す言葉の総称。

生物圏

地球表面において、人間を含む生物が息する大気圏、水圏及び地圏のうち、人間の生活に関連する領域。（専門部会報告書から引用）

接近シナリオ

火成活動、地震活動、断層活動、隆起・侵食、気候変動、海面変化などの天然現象や将未の人間活動を発端として、処分場に埋設された高レベル放射性廃棄物と人間との距離が接近し、影響が生物圏へ及ぶことを想定するシナリオ。（専門部会報告書から引用）

線量への換算係数

生物圏評価モデルを用いて地圏からの核種移行率（単位入力の核種フラックス）から線量を評価するための係数。

帯水層

地表面下にある水を含んだ層であり、井戸あるいは泉に対してかなりの水の供給ができるもの。（国際原子力機関放射性廃棄物管理用語集から引用）

堆積岩

海底や河床などに運ばれた泥や砂などの堆積物や、火山噴出物などが固まってできた岩石（例：砂岩、泥岩）をいう。

地下水シナリオ

処分場に埋設された高レベル放射性廃棄物に地下水が到達し、廃棄物中の放射性物質が地下水によって運ばれることにより、影響が生物圏へ及ぶことを想定するシナリオ。（専門部会報告書から引用）

地質環境

地層処分の観点から見た地下の環境。岩盤とそこに含まれる地下水などからなる。

地質環境条件

地層処分の観点からみた地質環境の条件。岩盤や地下水の性質（地質環境の特性）とそれらの長期にわたる安定性（地質環境の長期安定性）にわけてとらえることができる。地質環境の特性としては、人工バリアの設置環境および天然バリアとしての機能の観点から、地下水の流動特性、地下水の地球化学特性、岩盤の熱特性・力学特性および岩盤中での物質移行特性が重要である。

また、地質環境の長期安定性としては、これらの岩盤や地下水の性質に大きな変化を及ぼす可能性のある天然現象（地震・断層活動、火山・火成活動、隆起・沈降・侵食、気候・海水準変動）の発生の可能性やそれらによる影響が重要である。

地質環境モデル

既知および調査による情報の解釈を踏まえつつ、地表から地下深部の岩盤および地下水の性状や諸特性の空間分布などを可視化（概念化）したもの。地質環境モデルは、可視化する目的や記述する情報により、地質構造モデル、水理地質構造モデル、地球化学モデル、岩盤力学モデル、物質移動モデルなどに分けられる。これらのモデルには、ある時点の場の状態を表現したものと、時間の経過に伴う現象を表現したものがある。これらのモデルは情報量の増加とともに更新され、地下環境の理解の程度を推し量る材料として、さらには将来の予測などに用いられる。

地質構造モデル：対象とする場における地質・地質構造の空間分布を表現したもの。

水理地質構造モデル：対象とする場における透水性などの水理特性（⇒「水理特性」を参照）

- の空間分布を表現したもの。水理地質構造モデルを用いて、地下水流動に関する現象を推定するための数値解析（地下水流動解析）が行われる。
- 地球化学モデル : 対象とする場における地下水水質の空間分布と水質形成プロセス（異なる水質の地下水の混合や水-鉱物-生物相互反応など）を表現したもの。場の状態や現象を概念的に表現したモデルと数式化したモデルがある。
- 物質移動モデル : 対象とする場における物質移動現象と、その現象が生じている場の構造を単純化して表現したもの。場と現象を概念的に表現したモデルと現象を数式化したモデルがある。
- 岩盤力学モデル : 対象とする場における岩盤の物理・力学特性や初期応力状態の空間分布を表現したもの。岩盤力学モデルを用いて、坑道掘削に伴う影響を評価するための数値解析などが行われる。

地層処分

放射性物質を生物圏から長期にわたり隔離するため、放射性廃棄物を深地層（通常は数百m、あるいはより深部）に埋設すること。（IAEA: Radioactive Waste Management Glossary: 2003 Edition から引用）

地層処分システム

適切な地質環境の下に多重バリアシステムを構築することによって、処分された高レベル放射性廃棄物による影響が将来にわたって人間とその生活圏に及ばないようにするための仕組み。（専門部会報告書から引用）

天然バリア

放射性物質を閉じ込める機能を期待し、安定で地層処分に好ましい条件をもつ地下深部の岩盤をいう。処分場（多重バリアシステム）の構成要素の一つ。（原子力発電環境整備機構「処分場の概要」の説明資料から引用）

トレーサー試験

地下水の流動経路や物質移行特性を明らかにするための地下水調査手法の1手法。地下水流れの上流部から対象とする地下水にトレーサー（ある対象の挙動又は分布を知るために外部から加えて目印とする物質：放射性廃棄物関連用語解説集より）を投入し、下流部でトレーサーを検知する。トレーサーとしては色素、食塩、放射性同位体等が用いられる（土木用語辞典より）。原位置においては、単孔もしくは複数孔を用いて自然の流水系あるいは注水や揚水により変化を与えられた流れ系において実施される。（地下水の科学、ドミニコ&シュワルツより）

ナチュラルアナログ

廃棄物埋設後の放射性核種の挙動や人工バリアの腐食・変質など、地層処分システムにおいて想定される現象と類似した、自然界で過去に起こった長期的変化に関する現象をさす。

火山から噴出した火山ガラス、古代の遺跡などから発掘される銅鐸、地下に埋設された古い鉄管などは、人工バリアの候補材であるガラスや金属に類似しているため、これらの地下での長期的な変化を調べることにより、人工バリア中で生じ得る現象の確認および、評価方法の妥当性をチェックすることができる。また、天然の放射性核種を含むウラン鉱床などは、地層処分システム全体のナチュラルアナログの研究の場として利用できる。（専門部会報告書から引用）

熱力学データ

固体、化合物、ガス、溶存化学種に対して、物質の安定な状態を示す値として与えられる、ギブスの標準生成自由エネルギー、標準生成エンタルピー、標準エントロピー、標準熱容量などの値や、これらの値から導出される反応平衡定数（固相の溶解度積、溶存化学種の生成定数など）をいう。

放射性廃棄物処分の分野においては、固相の溶解度積、溶存化学種の生成／解離定数などを用いて、放射性元素の溶解度や溶存化学種の推定を行う。また、地下水水質の解釈やモデル化のために、鉱物の溶解／沈殿に関する平衡定数などが利用される。

平行平板モデル

亀裂内の地下水の流れや物質の移行を表現するための基本的なモデルで、亀裂内の間隙を均質な平行平板で表現するものである。

ベントナイト

モンモリロナイトを主成分とする粘土の一種。水を吸収して膨潤する性質およびイオン交換性を持つ。高レベル放射性廃棄物の地層処分では、緩衝材や処分坑の埋め戻し材の原料として用いられる。ベントナイトの膨潤により緩衝材の透水性が低下し、ガラス固化体に地下水が接触するのを防ぐ。また、ガラス固化体に地下水が接触したとしても、緩衝材の透水性が低いために放射性核種の移行が遅延し、イオン交換性により放射性核種が緩衝材に吸着される。（第2次取りまとめから引用）

放射線量（線量）

放射線が人体影響の原因となると考えたときの原因量を放射線量あるいは線量と呼ぶ。使用目的に応じ何種類かの線量が定義されているが、最も基本的なものは吸収線量（単位：グレイ）であり、単位質量に吸収されるエネルギーで表わされる。人体への影響を評価する場合には、吸収線量に放射線の種類や臓器の感受性の違いなどによる補正を行って求める実効線量（単位：シーベルト）が用いられる。（専門部会報告書から引用）

母岩

処分場が設置される地層のこと。（国際原子力機関放射性廃棄物管理用語集から引用）

補完的評価指標

生物圏モデルにおける仮定に依存せずに、線量やリスクに基づく評価を補完するための指標。処分システムの隔離能力や放射性廃棄物の潜在的な危険性を示す尺度として放射性核種の濃度およびフラックス、時間、放射能毒性指数などが挙げられる。

マトリクス拡散

透水性割れ目から岩盤マトリクス中の空隙や微小割れ目中への溶存物質の拡散（当該物質の濃度の高い領域から低い領域への濃度勾配による物質の移行）、あるいはその反対の拡散現象。花崗岩のような割れ目が卓越する岩盤で期待される、物質移動の遅延プロセスの一つである。（IAEA：Radioactive Waste Management Glossary: 2003 Edition に一部加筆）

レファレンスケース

安全評価には多数の解析ケースが含まれる。これらの解析を効率的に進めるために、第2次取りまとめでは、種々の解析ケースとの比較の基準として用いる解析ケースをレファレンスケースとして設定した。（第2次取りまとめから引用）

略語の説明

DOE	the Department of Energy (米国エネルギー省)
ENTRY	Engineering-scale Test and Research Facility (地層処分基盤研究施設)
HRL	Hard Rock Laboratory (スウェーデン・エスポ地下研究施設)
IAEA	International Atomic Energy Agency (国際原子力機関)
Nagra	National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (スイス放射性廃棄物処分協同組合)
OECD/NEA	Organisation for Economic Co-operation and Development / Nuclear Energy Agency (経済協力開発機構／原子力機関)
ONDRAF/NIRAS	the Belgian Agency for Management of Radioactive Waste and Enriched Fissile Materials (ベルギー放射性廃棄物・濃縮核分裂性物質管理機関)
PNNL	Pacific Northwest National Laboratory (米国パシフィック・ノースウェスト国立研究所)
QUALITY	QUantitative Assessment Radionuclide Migration Experiment Facility (地層処分放射化学研究施設)
SKB	Svensk Kärnbränslehantering AB (Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co) (スウェーデン核燃料・廃棄物管理会社)