



高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価における地下水水質設定の考え方

笹本 広 油井 三和

東海事業所 環境保全研究開発センター 処分研究部

資料番号：7-7

Viewpoint of Defining the Groundwater Chemistry for the Performance Assessment on Geological Disposal of High Level Radioactive Waste

Hiroshi SASAMOTO Mikazu YUI

Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

本報告では、地層処分研究開発第2次取りまとめにおける性能評価のための地下水水質設定に関する考え方について報告する。第1次取りまとめでの考察に加え、実測値を基にした統計学的解析(2変量散布図)を基に、幅広い地質環境を想定し、かつ性能評価上の重要性を考慮して、仮想的な5種類のモデル地下水を設定した。これらの仮想的地下水の性能評価上の優先度に関して、多変量に基づく実測地下水データの統計学的解析、実測値の信頼性、地下水水質形成に関する地球化学的根拠及び資源のある地域を選定しないという我が国の処分方針を踏まえ検討した。その結果、レファレンスケースに対しては降水系高pH型地下水、地質環境変更ケースに対しては海水系高pH型地下水を各々選定した。

This report presents the viewpoint of defining the groundwater chemistry for performance assessment of the second progress report (i.e., H-12 report) for research and development on geological disposal. Based on the results of statistical analysis (binary scatter plots) of the measured data in addition to the consideration of the first progress report (i.e., H-3 report), we defined the five hypothetically modeled groundwaters considering the general geological conditions and importance for performance assessment. In order to evaluate the priority of groundwater chemistries, we have analyzed the above five hypothetical groundwaters by considering the results of multivariate statistical analyses, data reliability, evidence for geochemical controls on groundwater chemistry and exclusion criteria for potential repository sites in Japan. As a result, the fresh reducing high pH (FRHP) type groundwater has been selected for the Reference Case analysis, and the saline reducing high pH (SRHP) type groundwater has been selected for the Alternative Geological Environmental Case analysis, respectively.

キーワード

地層処分、第2次取りまとめ、地下水、統計学的解析、性能評価

Geological Disposal, Second Progress Report, Groundwater, Statistical Analysis, Performance Assessment

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物を長期間にわたり安全に処分するため、人工バリアと天然の地層を組み合わせた多重バリアシステムによる地層処分が考えられている¹⁾。多重バリアシステムによる安全確保の機能を評価する上で地下水の化学的性質は、人工バリア材の長期的挙動、核種の溶解度、緩衝材及び岩石への収着挙動といった核種の移行特性に影響を与える重要な環境因子の一つである。

我が国においては、多重バリアシステムの性能

評価を行うに当たっては、「地域や岩種を特定せず、地質環境条件をできるだけ広く想定する」という「サイトジェネリック」な考え方に立っている¹⁾。これにより、処分技術の適用範囲を広く考えることが可能となり、その技術的選択の幅も広がることになる。我が国では、このような考え方を基に研究開発が進められ、1992年に地層処分の有効性に関する総合的な取りまとめ「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 - 」(以下、「第1次取りまとめ」)が公表

された²⁾。この成果を受け、我が国における地層処分技術の信頼性を示すことが地層処分研究開発の「第2次取りまとめ」に求められている。

これまでに、我が国における地下水水質の概要を把握するため、全国各地の地下水に関する公開文献を収集・調査してきた³⁾。その結果、データの多部分は、第四紀層や温泉・油田地域などにおける地下水であり、地域的に偏りがある、性能評価上重要な酸化還元電位に関する情報が少ないことが明らかになった。したがって、これら既存のデータから、我が国の地質環境条件をできるだけ広く想定するという考え方に立って、地層処分が想定されるような深部地下水の化学的性質を設定することは困難である。そこで、第1次取りまとめでは、地下水の水質形成に関して、一般的に適用可能と考えられる理論や多数の観測例に共通して認められる知見などにに基づき、主要な地球化学プロセスを考慮した地球化学モデルにより地下水水質を設定した²⁾。

第2次取りまとめにおいても、基本的に第1次取りまとめと同様な考え方で、性能評価のためのサイトジェネリックな地下水水質を地球化学モデルにより設定した⁴⁾。ただし、設定に当たっては、選定された信頼できる実測データを基に、第1次取りまとめで設定されたモデル地下水水質の妥当性を検討し、再度、地下水の類型化を試みた。また、統計学的解析により、類型化された地下水の妥当性を検討するとともに、モデル地下水を設定する上での地球化学的根拠の妥当性及び資源のある地域を選定しないという我が国の処分方針を踏まえ、地層処分システムの性能評価上設定する地下水水質としての優先度を検討した。

2. 性能評価のためのサイトジェネリックな地下水水質の設定

性能評価の体系は、地層処分システム及びその環境の将来にわたる挙動を想定するシナリオとシナリオに基づいて、その挙動を表現するモデルによる影響解析からなる。性能評価のためのシナリオとしては、地下水シナリオ（地下水による放射性核種の人間環境への移動を想定する）と接近シナリオ（放射性廃棄物と人間環境の直接的接近）の二つに大別される。ここでは、地下水シナリオにおいて考慮する地下水水質の設定に関して述べる。

我が国においては、処分候補地が決まっていないため、第2次取りまとめにおける地下水水質の設定に当たっては、第1次取りまとめと同様にサ

イトジェネリックな観点で行う必要がある。したがって、主要な地球化学プロセスを考慮した地球化学モデルにより地下水水質を設定する方法が有効である。ただし、設定に当たっては、信頼性のある実測値との比較によるモデル地下水の妥当性を検討することが重要である。そこで、以下に示すような手順により、第2次取りまとめにおける性能評価のためのサイトジェネリックな地下水水質を設定した。

実測データの選定

2 成分統計学的解析に基づく地下水の類型化 類型化された地下水のモデル化

多成分統計学的解析（多変量解析）に基づく モデル地下水の妥当性評価

性能評価上設定する地下水水質としての優先度の検討

上記の各手順における検討内容について、各々、以下に記述する。

2.1 実測データの選定

我が国における地下水水質の概要を把握するために収集された地下水データは、約15,000件に及ぶ²⁾。この中には、温泉・油田地域などに関連したデータもあり、通常、岩石-水反応で規制された地下水とは考え難いようなpHを示すデータも含まれている。また、電荷バランスの検討に基づき、データの信頼性が評価されていない。そこで、以下のような手順に従いデータを選定した。

(1) pH条件による選定

5.7 pH 10の範囲にあるデータを選定した。降水系の地下水の場合、通常、有機物の分解によって生じた炭酸ガスが地下水中に溶存し、地層中の鉱物と反応し、地下水中にアルカリ元素を溶出させ、pHがアルカリ側に移行すると考えられる。そこで、大気と水が平衡にある時の理論値(pH=5.7)をpHの下限とした。また、pHが非常に高い領域は、通常、岩石-水反応では考えにくいので、pH=10を上限と仮定した。なお、このようなpH領域は、海水系の地下水についても十分適用できると考えられている⁵⁾。このpH条件による選定の結果、約14,000件のデータが選定された。

(2) 電荷バランスの検討に基づく選定

電荷バランスの検討に当たっては、まず、陽イオンとして Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、陰イオンとして Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 HCO_3^- をすべて含むデータを選定した。その後、全陰イオン当量の値に応じ、陽イオンと陰イオンの電荷バランスを各々以下の条件⁶⁾で検討した。

全陰イオンが 0 ~ 3.0 meq/L の時

$$\frac{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) - \text{陰イオン}(\text{meq/L})}{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) + \text{陰イオン}(\text{meq/L})} = \pm 0.2 \text{ meq/L 以内}$$

全陰イオンが 3.0 ~ 10.0 meq/L の時

$$\frac{\frac{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) - \text{陰イオン}(\text{meq/L})}{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) + \text{陰イオン}(\text{meq/L})} \times 100}{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) + \text{陰イオン}(\text{meq/L})} = \pm 2 \% \text{ 以内}$$

全陰イオンが 10.0 ~ 800 meq/L の時

$$\frac{\frac{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) - \text{陰イオン}(\text{meq/L})}{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) + \text{陰イオン}(\text{meq/L})} \times 100}{\text{陽イオン}(\text{meq/L}) + \text{陰イオン}(\text{meq/L})} = \pm 2 \sim 5 \% \text{ 以内}$$

このような電荷バランスの検討により、約 5,000 件のデータが選定された。

(1) 及び (2) の条件を基に選定されたデータには、温泉地域や地熱地域などの地下増温率の高い地域のデータや第四紀層分布地域のデータも含まれている。地下増温率の高い地域のデータは、例えば火山活動などによる影響を受けていることも予想され、基本的な地下水シナリオに分類されるデータとしては考え難い。また、第四紀層は比較的新しい地層であるため半固結～未固結層も含まれ、比較的浅い深度を対象とする用水関係のデータが多く、地層処分が想定されるような深部のデータは少ない。そこで、以下の(3)、(4)の条件を基に、これらの地域に該当すると考えられるデータを除外した。

(3) $(3 / 100\text{m}) \times \text{深度}(\text{m}) + 20$ 条件による選定

日本における平均的な地温勾配が 100m 当たり 3 °C であること⁷⁾を考慮し、地下水温が上式で計算される値よりも大きい場合、何らかの熱的影響を受けている可能性があると考えてデータを除外した。なお、ここでは、地表水の平均的な水温として 20 °C を仮定した。このような地温勾配を考慮した地下水温の条件を基にした選定の結果、約 1,300 件のデータが選定された。

(4) 地層の種類による選定

第四紀層は地層処分の候補となる地層としては明らかに適正が劣ると考えられている⁸⁾ため、第四紀層中のデータは除外した。このように第四紀層中のデータを除外することにより、最終的に 300 件程度のデータが選定された。

なお、東濃・釜石・幌延地域などにおいては、地層科学研究の一環として信頼性のある深部地下水データが得られている^{9)~12)}。また、茂原地域においても、人工バリア材のナチュラルアナログ研究の一環として海水系の地下水データが得られて

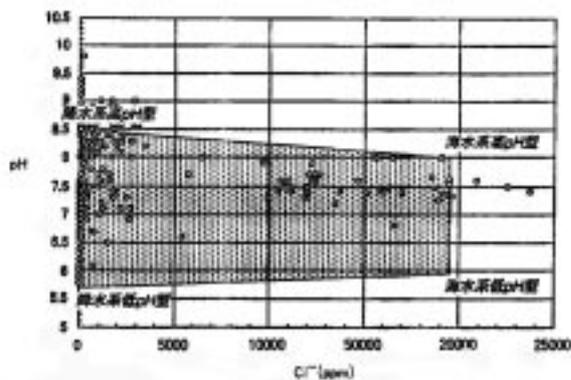
いる¹³⁾。これらのデータは、いずれも上記(1)～(4)の選定基準を満たすことから、上記(1)～(4)の手順に従い選定された実測値とともに、次項で記す 2 成分統計解析用のデータとして使用した。

2.2 2 成分統計学的解析に基づく地下水の類型化

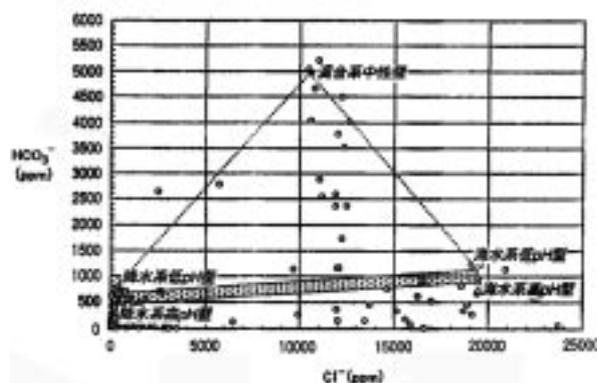
第 1 次取りまとめでは、地層処分システムの性能評価の観点から地下水の化学的性質にかかわる因子を抽出し、これらのうち性能評価上重要な因子 (pH、酸化還元電位、 HCO_3^- 濃度など) に対して、一般的に適用可能と考えられる理論に基づきモデル化し、仮想的な深部地下水として 4 種類の地下水水質を設定した³⁾ (降水系高 pH 型: Fresh Reducing High pH、降水系低 pH 型: Fresh Reducing Low pH、海水系高 pH 型: Saline Reducing High pH、海水系低 pH 型: Saline Reducing Low pH)。ここで、「高 pH」及び「低 pH」は性能評価の観点から考えた場合の相対的な表現である。なお、地下水のモデル化に当たり、典型的な水質形成モデルの一つとして、降水系地下水では降水、海水系地下水では海水を起源と仮定している。これら 4 種類に類型化されたモデル地下水の妥当性を検討するため、前項で選定された信頼できる実測値を用いた統計学的解析を行い、実測値とモデル地下水を比較した。

統計学的解析には様々な方法があるが、x-y 座標で示されるような 2 成分の散布図に基づく方法は、変数間の相関を明確に表すとともに、データの類型化を行う上で有効である。そこで、まず、最もよく用いられている 2 成分の散布図に基づく統計学的解析を行った。2 成分の散布図としては、 $\text{pH} \cdot \text{Cl}^-$ 図、 $\text{HCO}_3^- \cdot \text{Cl}^-$ 図などのように性能評価上重要な因子を成分とした散布図を作成した。これらの散布図を基に、4 種類に類型化されたモデル地下水で設定される水質幅と実測データから導かれる水質幅の比較を行った。なお、酸化還元電位は性能評価上重要な因子の一つであるが、実測データの多くは信頼できる酸化還元電位の値が少ないため、比較に際して酸化還元電位は含めていない。

比較の結果、例えば $\text{pH} \cdot \text{Cl}^-$ 図 (図 1) では、4 種類のモデル地下水の端成分を結ぶ領域は、比較的広い範囲にわたり実測データから導かれる水質幅をカバーできていることが分かる。一方、 $\text{HCO}_3^- \cdot \text{Cl}^-$ 図 (図 2) では、4 種類のモデル地下水の端成分を結ぶ領域に比べて、かなり HCO_3^- 濃度の高い実測地下水も存在し、モデル地下水の端成分を結ぶ領域では実測データから導かれる水質幅をカバーできていないことが分かる。 HCO_3^- 濃度は、特にア

図1 pH-Cl⁻図

実測値と第1次取りまとめで設定された4種類のモデル地下水との比較

図2 HCO₃⁻-Cl⁻図

実測値と第1次取りまとめで設定された4種類のモデル地下水及び混合系中性型モデル地下水との比較

クチニド元素の溶解度に影響を与えることから性能評価の上で重要な因子である。そこで、このような高HCO₃⁻濃度の地下水（HCO₃⁻濃度：5,000ppm程度）もカバーできるような地下水を新たに類型化した（図2）。なお、高HCO₃⁻濃度の地下水は、Cl⁻濃度が10,000ppm程度で、pHが7程度であることから、降水系地下水と海水系地下水の混合系でpHが中性の地下水という意味で「混合系中性型（Mixing Reducing Neutral pH）」地下水として設定した。これにより、2成分統計学的解析の結果から、性能評価のためのサイトジェネリックな地下水水質として、5種類の地下水水質が類型化された。

2.3 類型化された地下水のモデル化

地下水の水質形成をモデル化する手法として

は、平衡論モデルと速度論モデルの2通りが考えられる。

平衡論モデルは、種々の地層の構成鉱物などと地下水の間で、閉鎖系の部分平衡を仮定して作られるモデルであり、このモデルにより、地下水組成の鉛直方向での水質変化を計算することが可能である。また、平衡論モデルでは熱力学データを用いるが、種々の鉱物に対する熱力学データの数も充実している。さらに、地下深部での流速は一般的に非常に遅く、地下水流れに沿った地層の構成鉱物と地下水との化学的相互作用の時間も長いと考えられるため、実測された深部地下水の水質形成の解釈に熱力学的アプローチが用いられている事例が多い^{9)~11), 14), 15)}。

一方、速度論モデルは、実験系の一部の単純な系においては適用可能であるが、天然の地下水のような複雑な系においては、モデル化の事例が少なく、また使用できる速度論データの数にも限りがあるため、現状では、平衡論モデルに比べると適用するのが難しい。そこで、地層処分が想定されるような深部の地下水水質をモデル化する手法として、平衡論モデルを適用した。

前項で類型化された5種類の地下水は、地下水の起源、結晶質岩や堆積岩に共通して認められる鉱物の種類及び性能評価上重要となる地下水特性を支配すると考えられる主要な地球化学反応を基に、熱力学データを用いた平衡論モデルにより設定した。地下水をモデル化する上で仮定した主要な地球化学反応は、深部地下水の熱力学的解釈に基づき推定された支配的反応^{9)~11), 14), 15)}や天然の地下水系における代表的な地球化学プロセスとして考慮されている反応^{16), 17)}である。これらの支配的反応の中には、天然の地下水環境下において必ずしも平衡に達しているとは限らないものも含まれるが、地下水水質を近似する上では有効であるため、水質形成モデルの中で考慮した。

モデル計算に当たっては、国際的にも広汎に使用され、その信頼性も国際的ベンチマークテストにより確認されており¹⁸⁾、第1次取りまとめでも用いられた地球化学コードであるPHREEQE¹⁹⁾を用いた。また、モデル計算に使用した熱力学データベースは、第1次取りまとめと同様にPHREEQEのオリジナル版にOECD/NEAの熱力学データ²⁰⁾を追加したものである。モデル計算は、熱力学データベースの温度依存性に関するデータが限られていることから、25で行った。

以下に各々の地下水をモデル化するに当たり仮定した主要な地球化学反応などをまとめる。

(1) 降水系地下水の場合

典型的なモデルとして、降水起源の地下水を想定し、降水が土壌帯を浸透した後、岩体中に浸透し鉱物と反応することにより地下水が形成されるモデルを仮定した。

1) 降水系高pH型

大気中での水-ガス(O₂, CO₂)反応、土壌中での有機物の分解によるCO₂ガスの吸収反応、岩体中の鉱物(玉髄、方解石、曹長石、カオリナイト、微斜長石、黄鉄鉱、磁鉄鉱)-水反応を仮定した(図3)。

2) 降水系低pH型

大気中及び土壌中で考慮した反応は降水系高pH型で考慮した場合と同様である。岩体中では、降水系高pH型で考慮した鉱物に加えて、岩体中での有機物の分解による酸化性化学種の還元反応を仮定した。

(2) 海水系地下水の場合

典型的なモデルとして、海水起源の地下水を想定し、岩体中に閉じこめられた海水が周辺の岩石を構成する鉱物と反応することにより地下水が形成されるモデルを仮定した。化石海水のような地下水では、海水中で認められるSO₄²⁻がほとんど認められないことから、海水系地下水をモデル化するに当たって、岩体中の有機物によるSO₄²⁻の還元反応を主要な反応と仮定した。

1) 海水系高pH型

海水と岩体中の鉱物(玉髄、方解石、苦灰石、曹長石、微斜長石、白雲母)との反応、岩体中の有機物によるSO₄²⁻の還元反応を仮定した(図4)。

2) 海水系低pH型

海水と岩体中の鉱物(玉髄、カオリナイト、方解石、苦灰石)との反応、岩体中の有機物によるSO₄²⁻の還元反応を仮定した。

(3) 混合系地下水の場合

典型的なモデルとして、降水系地下水と海水系地下水を混合することにより地下水が形成されるモデルを仮定した。

1) 混合系中性型

降水系高pH型地下水と海水系高pH型地下水を1:1で混合させ、Cl濃度を10,000mg/l程度にした後、地下水と岩体中の鉱物(玉髄、微斜長石、方解石、苦灰石)との反応、岩体中の有機物の分解に伴うCO₂ガスの吸収反応を仮定した。

上記の方法により、各モデル地下水のpH、酸化還元電位や主要イオン濃度(例えば、Na⁺、Ca²⁺、HCO₃⁻、SO₄²⁻など)は導出されるが、このほかに、PO₄³⁻やF⁻のようにアクチニド元素との錯体や難溶性塩を形成し、アクチニド元素の溶解度に影響を与える可能性のある元素の濃度も性能評価上考慮する必要がある。PやFなどの元素濃度は、鉱物-水反応の化学平衡により濃度が規定されているとは考え難いため、2.1項で選定された実測データを基に各元素濃度の平均値を導出し、参考値として用いた。これら実測データから導かれた元素濃度は、上述した地球化学モデルにより導出された計算値と組み合わせられた。その後、Na⁺あるいはCl⁻により電荷バランスを調整し、性能評価のためのモデル地下水水質として設定した(表1)。

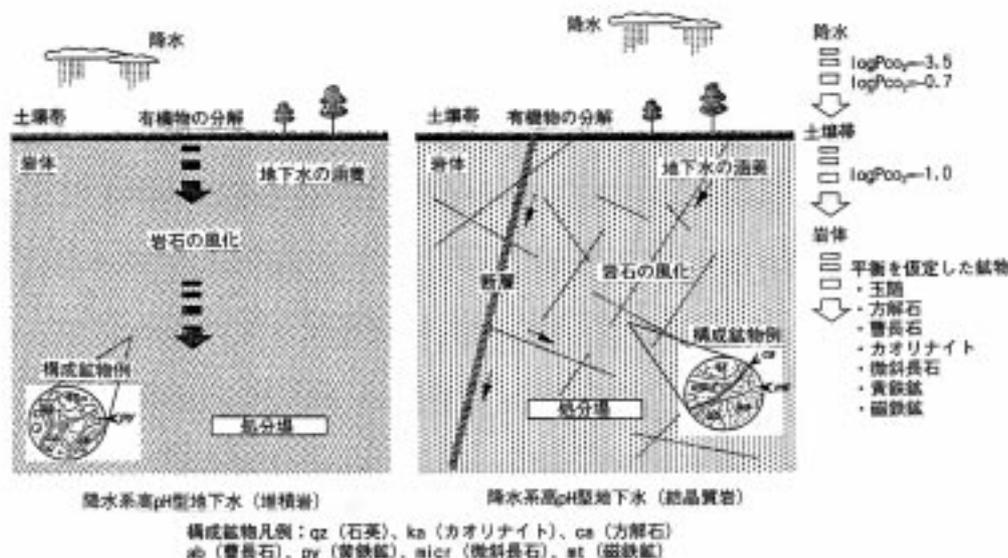


図3 降水系高pH型地下水の水質形成にかかわる概念モデル

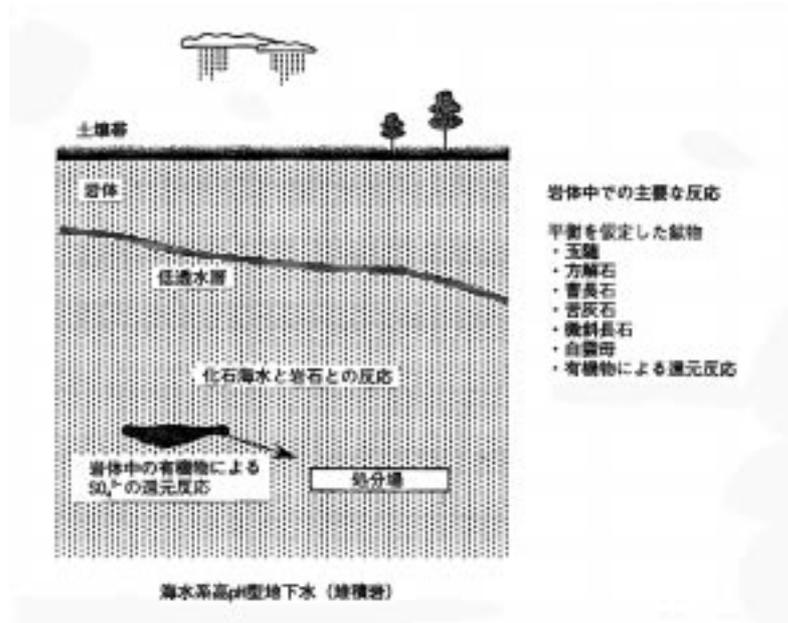


図4 海水系高pH型地下水の水質形成にかかわる概念モデル

表1 第2次取りまとめにおける性能評価のために設定されたモデル地下水水質

	降水系 高pH型地下水	降水系 低pH型地下水	海水系 高pH型地下水	海水系 低pH型地下水	混合系 中性型地下水
pH	8.46	5.70	7.95	5.96	7.07
Eh [mV]	-281	-156	-303	-159	-244
温度 [°C]	25	25	25	25	25
イオン強度 [molality]	0.004	0.004	0.632	0.654	0.389
電荷バランス [eq] ¹⁾	9.96E-14	3.26E-13	-7.30E-12	-1.73E-13	1.51E-11
元素	全濃度 (molality)				
Na	3.55E-03	3.47E-03	6.17E-01	5.00E-01	3.09E-01
K	6.15E-05	5.99E-05	1.06E-02	1.09E-02	7.99E-02
Mg	5.00E-05	5.00E-05	2.49E-04	2.07E-02	3.32E-04
Ca	1.09E-04	1.07E-04	3.34E-04	2.76E-02	4.52E-04
Al	3.43E-07	2.19E-05	3.21E-09	3.12E-08	6.62E-10
Si	3.39E-04	3.23E-04	2.95E-04	2.90E-04	2.94E-04
Fe	9.73E-10	3.12E-08	3.89E-08	3.89E-08	1.99E-08
F ²⁾	5.40E-05	5.40E-05	1.02E-04	1.02E-04	1.02E-04
Cl	1.46E-05	1.02E-04	5.90E-01	5.90E-01	2.95E-01
C	3.54E-03	3.55E-02	3.46E-02	4.23E-02	2.00E-01
S	1.11E-04	6.23E-08	3.01E-02	3.01E-02	1.51E-02
B ²⁾	2.93E-04	2.93E-04	1.71E-03	1.71E-03	1.71E-03
P ²⁾	2.86E-06	2.86E-06	2.63E-07	2.63E-07	2.63E-07
N ²⁾	2.30E-05	2.30E-05	5.15E-03	5.15E-03	5.15E-03
Br ²⁾	-	-	5.26E-04	5.26E-04	5.26E-04
I ²⁾	-	-	1.98E-04	1.98E-04	1.98E-04
溶存化学種	濃度 (molality)				
HCO ₃ ⁻	3.44E-03	3.77E-03	1.19E-02	1.39E-02	8.14E-02
CO ₃ ²⁻	5.75E-05	1.08E-07	1.25E-04	1.50E-06	1.15E-04
CO ₂ (aq)	2.50E-05	1.59E-02	2.10E-04	2.39E-02	1.08E-02
CH ₄ (aq)	1.54E-10	1.59E-02	2.00E-02	4.23E-04	9.99E-02
SO ₄ ²⁻	1.08E-04	9.87E-13	3.16E-05	2.22E-04	1.51E-05
HS ⁻	3.76E-09	3.24E-09	2.80E-02	3.57E-03	9.65E-03
H ₂ S (aq)	1.18E-10	5.91E-08	2.10E-03	2.60E-02	5.44E-03
NH ₄ ⁺	1.99E-05	2.30E-05	5.00E-03	5.15E-03	5.13E-03
Fe ²⁺	8.92E-10	3.11E-08	1.19E-13	2.10E-11	1.00E-12
H ₄ SiO ₄ (aq)	3.23E-04	3.23E-04	2.89E-04	2.90E-04	2.93E-04

1) Na⁺あるいはCl⁻により電荷バランスを調整した。
 2) これらの元素濃度は、スクリーニングされた実測データを基に各元素濃度の平均値から算出した。

2.4 多成分統計学的解析（多変量解析）に基づくモデル地下水の妥当性評価

2.2 項で記述したように2成分の散布図に基づく統計学的解析からは、性能評価上重要な因子であるpH、 HCO_3^- 、 Cl^- に着目した場合、5種類の地下水水質が類型化された。一方、地下水データは、pH、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 HCO_3^- 、 Cl^- など幾つかの変量を伴う多変量データであるが、2成分の散布図では、地下水データが有するすべての変量を考慮した統計学的解析が行えないため、多変量データを総合的に解析して分類を行うことができない。多変量データからなる複雑なデータセットに対しては、多変量解析を行わない場合、データ間の重要な相関を見落とし、統計的不整合を招くような解析結果を導くことも考えられる。そこで、2.1 項で選定された実測データを用いた多変量解析を行い、実測データを再度類型化するとともに、2.3 項でモデル化された5種類のモデル地下水分類の妥当性を再検討した。なお、解析に当たっては、汎用プログラムであるPirouette²¹⁾を用いてHCA (Hierarchical Cluster Analysis: 階層的クラスター分析)及びPCA (Principal Component Analysis: 主成分分析)を行った。以下に、HCA及びPCAによる解析方法の概要、解析条件及び解析結果についてまとめる。

(1) 解析方法

1) HCA

HCAでは、データセット中の2つのサンプル間の距離をすべて算出した後に各距離を比較することによりデータの分類を行う。例えば、2つのサンプルa、b間の多変量距離は、それぞれのm変数の差から以下の式で求めることができる。

$$d_{ab} = \sum_{j=1}^m [(X_{aj} - X_{bj})^M]^{1/M} \quad \dots\dots(1)$$

ここで、 d_{ab} は2つのサンプル間の距離を示し、Mは乗数を示す。今回は、多変量解析で頻繁に用いられるユークリッド距離(M=2の場合)を基に解析を行った。またHCAでは、サンプル間の距離を算出した後、距離を標準化したスケール(類似値: Similarity)に変換し、この類似値を基にデータの類似性を判断する。類似値は、下式を基に算出される。

$$\text{Similarity}_{ab} = 1 - \frac{d_{ab}}{d_{max}} \quad \dots\dots(2)$$

ここで、 d_{max} はデータセット中の2つのサン

プル間の最大距離を示す。次に算出された類似値を基にサンプル間を関係付け、デンドログラム(dendrogram)と呼ばれる樹形図を作成し、この樹形図を用いてデータセットのクラスターを検討し、データの分類を行う。

2) PCA

PCAでは、解析の対象となる多次元のデータセットに対して、データの次元数を減らし、データのグルーピングを行う。データの次元数を減らす場合、多変量データに対して最大の変動量を示す軸(主成分軸)を求める。PCAは、元の次元のデータをできるだけよく表示している主成分軸(すなわち、寄与率の大きな主成分軸)を基に評価を行うことが重要になる。また、PCAで求められるローディングにより、各々の主成分軸に対してどの変数が重要でどの変数があまり影響していないかが分かる。

(2) 解析条件

HCA及びPCAによる多変量解析で考慮した変量は、pH及び地下水の主要成分である Na^+ 、 Ca^{2+} 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Cl^- の合計8変量である。なお、pHと各種イオン濃度とは単位が異なる。このため、イオン濃度の変動幅の方がpHの変動幅に比べて大きく、変動幅の小さいpHによる影響が隠れてしまう恐れがある。本解析では、データの前処理として分散スケールを用い、そのような影響を取り除いてから実施した。

(3) 解析結果

1) HCA

図5にHCAの結果を示す。例えば、類似値を0.6程度にした場合、以下のような6つのクラスター(Cluster)に分類されることが分かる(Cluster-1: 黄色、Cluster-2: 赤色、Cluster-3: 緑色、Cluster-4: 青色、Cluster-5: ピンク色、Cluster-6: 水色)。また、これらの各クラスターの特徴は以下のとおりである。Cluster-1はモデル地下水である混合系中性型地下水のみ、Cluster-2は比較的塩濃度の高い地下水、Cluster-3はCa濃度が高く比較的 HCO_3^- 濃度が低い地下水、Cluster-4は塩濃度が低く相対的にpHが低い地下水、Cluster-5は塩濃度が低く相対的にpHが高い地下水、Cluster-6は比較的 SO_4^{2-} 濃度が高い地下水である。混合系中性型以外のモデル地下水は、降水系高pH型がCluster-5に、降水系低pH型がCluster-4に、海水系高pH型と海水系低pH型がCluster-2に各々分類される。

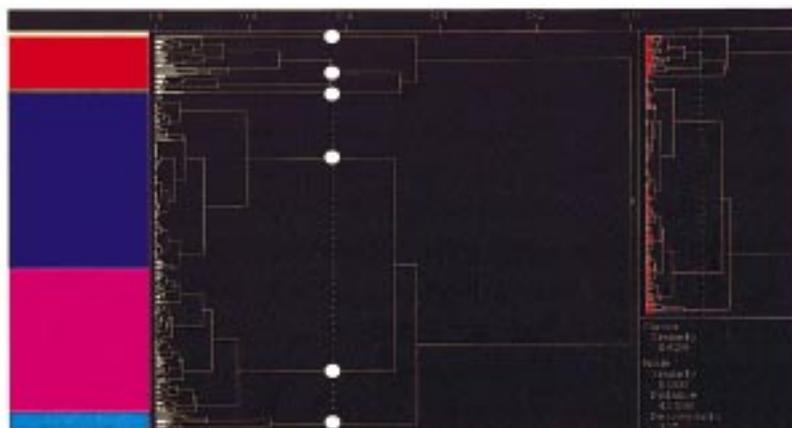


図5 HCAによる解析結果

個々のデータは、黄色の線(枝)でリンクされている。類似度を0.6程度にした場合(図中の白点線)、6箇所の枝にあたり、6つのクラスター(黄色、赤色、緑色、青色、ピンク色、水色)に分類されていることが分かる。

2) PCA

表2にPCAの結果算出された各主成分軸の寄与率を示す。また表3には、各主成分軸に対する各変数のローディングを示す。表2から、本解析では、3つの主成分軸を考慮することで、元の8次元のデータセットに対して、71%程度

表2 PCAの結果算出された各主成分軸の寄与率

	各主成分軸の寄与率 (%)	累積寄与率 (%)
Factor-1	44.105	44.105
Factor-2	14.369	58.475
Factor-3	12.675	71.150
Factor-4	12.169	83.318
Factor-5	9.703	93.021
Factor-6	5.626	98.647
Factor-7	1.350	99.997
Factor-8	0.003	100.000

の寄与率でデータを評価できることが分かる。また、表3より、第1主成分の主な因子は Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 及び HCO_3^- 、第2主成分の主な因子は Ca^{2+} 及び SO_4^{2-} 、第3主成分の主な因子はpHであることが分かる。さらに、これら3つの主成分軸を基にデータをプロットした図(スコアプロット)を用いて、各モデル地下水が実測値のどのクラスターに分類されているかを調べた(図6)。なお、スコアプロットにおける各データの色は、HCAで分類された各クラスターの色に一致する。図6から降水系高pH型、降水系低pH型及び海水系高pH型は、各々、実測値と共にブルーピングされるが、混合系中性型及び海水系低pH型についてはブルーピングされないことが分かる。混合系中性型は、高 HCO_3^- 濃度で特徴づけられる地下水タイプであるが、同時に K^+ 濃度も高く、このためいず

表3 PCAの結果算出された各主成分軸に対する各変数のローディングの値

	Factor-1	Factor-2	Factor-3	Factor-4	Factor-5	Factor-6	Factor-7	Factor-8
pH	-0.016	0.249	0.715	-0.646	-0.011	0.055	0.078	-0.001
Na^+	0.508	0.048	-0.063	-0.138	-0.105	-0.291	-0.421	0.666
K^+	0.282	-0.272	0.312	0.225	0.761	-0.263	0.221	0.025
Ca^{2+}	0.204	0.667	-0.330	-0.065	0.423	0.437	0.144	0.101
Mg^{2+}	0.474	-0.046	-0.022	0.044	-0.425	-0.016	0.766	0.059
HCO_3^-	0.378	-0.372	0.229	0.133	-0.065	0.752	-0.272	-0.066
Cl^-	0.503	0.131	-0.137	-0.166	-0.030	-0.279	-0.263	-0.732
SO_4^{2-}	0.033	0.509	0.455	0.679	-0.211	-0.093	-0.132	-0.035

ローディングの値は、+1と-1の間の値になり、その絶対値は、各主成分軸に対する元の変数の相対的な貢献度を示す。

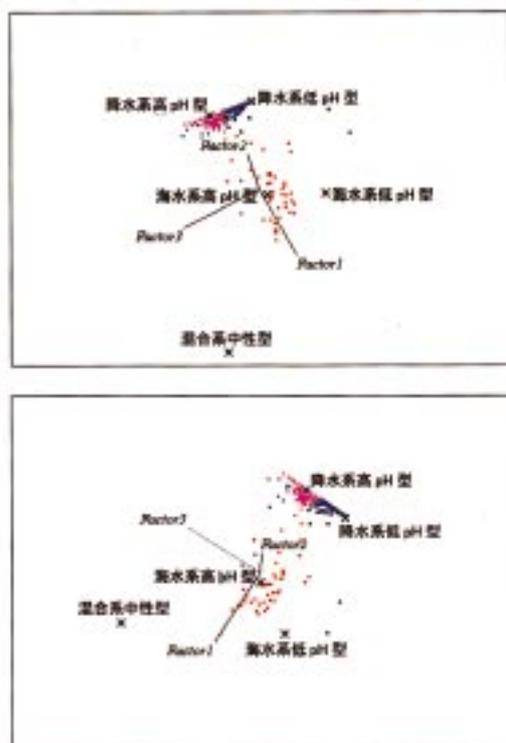


図6 PCAによる解析結果（スコアプロット）

図中の各データの色は、HCAで分類された各クラスターの色に一致する。降水系高pH型、降水系低pH型及び海水系高pH型は、各々、実測値とともにグルーピングされていることが分かる。なお、上・下の図は同一の図であり、各々、異なる角度から見た場合の図である。

れのクラスターにも分類されない結果となった。海水系低pH型は、HCAでは海水系高pH型と同様のクラスターに分類されるが、PCAでは、第3主成分の主な因子であるpHの影響のため海水系高pH型と同様なグループに分類されなかったと考えられる。

以上、HCA及びPCAによる統計学的解析に基づけば、5種類のモデル地下水のうち、降水系高pH型、降水系低pH型及び海水系高pH型に関しては、実測値を基に、その分類の妥当性が支持されると考えられる。

2.5 性能評価上設定する地下水水質としての優先度の検討

地層処分システムの性能評価においては、システムの安全性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）を抽出したFEPリストを用いて、性能評価のためのシナリオが作成される。このシナリオに対して、通常、複数の解析ケースが

設定される。第2次取りまとめでは、各々の解析ケースによる結果を相互に比較するための参照となる解析ケースとして「レファレンスケース」を設定した²²⁾。また、他の解析ケースは、レファレンスケースのモデルやデータを変更することにより設定した²²⁾。地質環境条件の一つである地下水に関しては、「レファレンスケース」及びシステム（地質環境や処分場の仕様）の多様性を検討するための解析ケースの1つである「地質環境変更ケース」の2つのケースについて各々設定することになった。そこで、2.1～2.4項で設定・検討された5種類の地下水水質に対して、第2次取りまとめにおける性能評価で考慮する地下水水質としての優先度を検討し、レファレンスケース及び地質環境変更ケースで考慮する地下水水質を決定した。以下に優先度の検討内容を記す。

まず、2.2項で設定された5種類の地下水水質のうち、海水系低pH型及び混合系中性型は多変量解析に基づく地下水分類の妥当性評価からは支持されなかった。また、混合系中性型のような高 HCO_3^- 濃度の地下水は、油田地域などに付随する地下水に典型的に認められるものであり、このような高 HCO_3^- 濃度の成因の1つとして地層中の有機物の分解により生じた CO_2 による影響が考えられている²³⁾。このような資源のある地域は、将来的に人間侵入の動機となる可能性があるため、処分場候補地の選定に先だって排除されると考えられている²²⁾。したがって、海水系低pH型及び混合系中性型は、性能評価で考慮する地下水水質としての優先度は低いと考えられる。

次に、多変量解析の結果から妥当性が支持された降水系高pH型、降水系低pH型及び海水系高pH型の3種類について検討する。降水系高pH型は、東濃・釜石地域のような信頼性のある深部地下水データに代表される地下水タイプであり、平衡論に基づいた水質形成モデルの適用性も確認されており、地球化学的根拠の妥当性が示されている^{24)～26)}。一方、海水系高pH型は、幌延・茂原地域のような深部地下水データに代表される地下水であるが、降水系高pH型に比べると現段階では水質形成モデルの適用性が十分に確認されているとはいえない⁴⁾。降水系低pH型は、方解石に対して未飽和であり、一般的に考えられている深部地下水に対する地球化学的根拠に適合せず、また水質形成モデルの適用性も確認されていない⁴⁾。

以上のように、統計学的手法による地下水分類の妥当性の検討結果、実測値の信頼性、地下水水質形成に関する地球化学的根拠及び資源のある地

域を選定しないという我が国の処分方針を踏まえ、5種類のモデル地下水に対して性能評価上設定する地下水水質の優先順位を検討した結果、以下のような優先度及び性能評価上の位置付けが考えられた。

(1) 第1優先：降水系高pH型

我が国の深部地下水として広く認められ、信頼性のある実測値も得られており、地下水水質形成に関する地球化学的根拠に適合するモデル地下水。

(2) 第2優先：海水系高pH型

我が国において比較的多く認められ、実測値の信頼性もあるモデル地下水。降水系高pH型よりイオン強度が大きいので、性能評価上、降水系高pH型に対してイオン強度の幅を与える地下水として考慮する。

(3) 第3優先：降水系低pH型、海水系低pH型及び混合系中性型

地球化学的根拠や統計的解析からの支持が乏しいモデル地下水。ただし、性能評価上は、降水系高pH型に対してpHやイオン強度の幅を与える地下水として考慮する。

以上のような性能評価上の優先度及び位置付けを基に、第2次取りまとめにおいては、降水系高pH型をレファレンスケースの地下水に、海水系高pH型を地質環境変更ケースの地下水に、それぞれ設定した。

3. おわりに

本報告では、高レベル放射性廃棄物地層処分システムの性能評価上重要となる地質環境条件の一つである地下水の地球化学特性に関して、第1次取りまとめでの考察に加え、実測値を基にした統計学的解析(2変数散布図)により、幅広い地質環境を想定し、かつ性能評価上の重要性を考慮して、仮想的な5種類のモデル地下水を設定した。また、多変数解析による地下水分類の妥当性の検討結果、実測値の信頼性、地下水水質形成に関する地球化学的根拠及び資源のある地域を選定しないという我が国の処分方針を踏まえ、これら5種類のモデル地下水に対して、地層処分システムの性能評価上設定する地下水水質としての優先度を検討した。その結果、第2次取りまとめにおける以下の各性能評価解析ケースに対して、各々、以下のモデル地下水を選定した。

レファレンスケース：降水系高pH型地下水

地質環境変更ケース：海水系高pH型地下水

なお、第2次取りまとめにおいて設定された地

下水は、いずれも高pH型であるが、低pH型地下水の潜在的な存在も考慮する必要がある。例えば、地下水の採水方法によっては、地下水に溶存していたCO₂ガスが脱ガスし、pHの測定値が本来の深部地下水のpHよりも高くなっている場合も考えられる²⁷⁾。このような場合は、脱ガスを考慮した補正計算を行い、本来の深部地下水のpHを推定する必要がある。しかしながら、今回はデータ補正の必要性の有無まで検討していないため、実測データの中には、脱ガスの影響を受け、pHの測定値が本来の深部地下水のpHよりも高くなっているデータも含まれている可能性がある。したがって、幅広い地質環境及びデータの不確実性も考慮し、性能評価のための地下水水質を設定するためには、第3優先として位置付けられた降水系低pH型、海水系低pH型及び混合系中性型地下水についても潜在的な地下水水質として考慮しておく必要があると考えられる。

謝辞

本研究をまとめるに当たり、Dr. Ian G McKinleyをはじめとするスイスNagraの方々及び米国Monitor Scientific LLCのDr. Michael J Apted、Dr. Randolph C Arthurには、貴重なコメントを頂いた。また、検査開発(株)の陶山忠宏氏、原子力システム(株)の吉田 泰氏には、地下水データ処理や地球化学計算を手伝っていただいた。以上の方々に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会：“高レベル放射性廃棄物の地層処分研究開発の重点項目とその進め方”(1989)。
- 2) 動力炉・核燃料開発事業団：“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-”，動力炉・核燃料開発事業団 技術資料，PNC TN1410 92-081 (1992)。
- 3) 瀬尾俊弘，清水和彦：“我が国における地下水の水質に関するデータの収集・解析”，動力炉・核燃料開発事業団 技術資料，PNC TN7410 92-017 (1992)。
- 4) M.Yui, H.Sasamoto et al.：“Groundwater Evolution Modeling for the Second Progress Performance Assessment (PA) Report”，Japan Nuclear Cycle Development Institute Technical Report, JNC TN8400 99-030 (1999)。
- 5) D.Savage, R.C.Arthur：“pH and PCO₂ in Groundwater in Fractured Hard Rocks”，Geofluids 7 (1997), Contribution to the Second International Conference on Fluid Evolution, Migration and Interaction in Sedimentary Basins and Organic Belts, Belfast Northern Ireland, ISBN 1-897799-83-7 (1997)。
- 6) L.C.Friedman, D.E.Erdmann：“Quality Assurance Practices for Analyses of Water and Fluvial Sediment”(Tech.Water Resources Inc., Book 5, Chapter A6) (1982)。
- 7) 力武常次：“地球科学ハンドブック”，聖文社，ISBN 4-7922-1332-0 (1992)。
- 8) 原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会：“放射性廃棄物処理処分方策について(中間報告)”(1984)。

- 9) T.Iwatsuki, K.Sato et al. : " Hydrochemical Investigation of Groundwater in the Tono Area, Japan " In: Scientific Basis for Nuclear Water Management , Material Research Society Symposium Proceedings, vol.353, p.1251-1257 (1995) .
- 10) T.Iwatsuki, H.Yoshida : " Groundwater Chemistry and Fracture Mineralogy in the Basement Granitic Rock in the Tono Uranium Mine Area, Gifu Prefecture, Japan - Groundwater Composition, Eh Evolution Analysis by Fracture Filling Minerals - " , Geochemical Journal, vol.33, p.19-22 (1999) .
- 11) 笹本 広, 瀬尾俊弘 他 : 釜石鉱山における地下水の地球化学的研究(1), 動力炉・核燃料開発事業団 技術資料, PNC TN8410 96-203 (1996) .
- 12) H.Ii, Y.Ishii et al. : Development of an Apparatus to Measure Groundwater Qualities *In-situ* and to Sample Groundwater Using Boreholes, *Environmental Geology*, 32(1), p.17-22 (1997) .
- 13) G.Kamei, Y.Yusa et al. : " A Natural Analogue of Nuclear Waste Glass in Compacted Bentonite " , *Applied Geochemistry*, 15, p.141-153 (2000) .
- 14) D.Grimaud, C.Beaucaire et al. : " Modeling of the Evolution of Groundwaters in a Granite System at Low Temperature : the Stripa Ground Waters, Sweden " , *Applied Geochemistry*, 5, p.515-525 (1990) .
- 15) C.Beaucaire, P.Toulhoat et al. : " Chemical Characterisation and Modeling of the Interstitial Fluid in the Boom Clay Formation, In: Proceedings of the Water-Rock Interaction " , p.779-782, Balkema Rotterdam, ISBN 90 5410 5496 (1995) .
- 16) R.A.Freeze, J.A.Cherry : " Groundwater " , Prentice Hall, USA, Englewood Cliffs, NJ (1979) .
- 17) D.K.Nordstrom, J.L.Munoz : " Geochemical Thermodynamics, 2nd Edition " , Blackwell Science Publications, ISBN 0-86542-274-5 (1994) .
- 18) D.Reed, T.Broyd : " Report on Stage 1 of Project CHEMVAL/MIRAGE " , E0979, 001/DR/Km (1988) .
- 19) D.L.Parkhurst, D.C.Thorstenon et al. : " PHREEQE - A Computer Program for Geochemical Calculations " , U.S.Geological Survey Water-Resources Investigations Report 80-96 (1980) .
- 20) 例えば, A.B.Muller : " NEA Compilation of Chemical Thermodynamic Data for Minerals Associated with Granite " , OECD/NEA, RWN-5 NEA Report (1985) .
- 21) Info Metric Inc : " Pirouette [Multivariate Data Analysis for IBM PC System] " User's Manual (1997) .
- 22) 核燃料サイクル開発機構 : わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性 - 地層処分研究開発第2次取りまとめ -, 核燃料サイクル開発機構 技術資料, JNC TN 1400 99-020 (1999) .
- 23) 二間瀬 冽 : " 石油・天然ガス付随水の化学組成について " , 北海道地下資源調査報告書, 第46号 (1974) .
- 24) 油井三和, 瀬尾俊弘 他 : " 地下水の水質形成に関するモデリング " , 日本地球化学会年会予稿集, p.157 (1993) .
- 25) H.Sasamoto, M.Yui et al. : " Status of Geochemical Modeling of Groundwater Evolution at the Tono *In-situ* Tests Site, Japan " , Japan Nuclear Cycle Development Institute Technical Report, JNC TN8400 99-074 (1999) .
- 26) H.Sasamoto, M.Yui et al. : " Hydrochemical Investigation and Status of Geochemical Modeling of Groundwater Evolution at the Kamaishi *In-situ* Tests Site, Japan " , Japan Nuclear Cycle Development Institute Technical Report, JNC TN8400 99-033 (1999) .
- 27) M.H.Bradbury, B.Baeyens : " Derivation of *In-situ* Opalinus Clay Porewater Compositions from Experimental and Geochemical Modelling Studies " , PSI Bericht Nr.97-14, ISBN 1019-0643 (1997) .