



核種移行データベースの利用環境整備 の現状

笹本 広 吉田 泰 磯貝 武司 陶山 忠宏
神徳 敬* 柴田 雅博 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
*石川島播磨重工業株式会社 原子力事業部

Current Status of System Development to Provide Databases of Nuclides Migration

Hiroshi SASAMOTO Yasushi YOSHIDA Takeshi ISOGAI Tadahiyo SUYAMA
Takashi JINTOKU* Masahiro SHIBATA Mikazu YUI

Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works
*Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.

サイクル機構では、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全評価に必要となる核種移行データベースを開発し、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を示す第2次取りまとめに反映した。本データベースの技術レベルや有用性は国内だけでなく、海外からも高く評価された。そこで、サイクル機構が開発した核種移行データベースを国内外に幅広く普及し、その利用を促進するため、1) 地球化学コード PHREEQE から PHREEQC, GWB 及び EQ3/6 用にデータベースフォーマットを変換させるためのツール開発、2) 核種移行データベース利用のための外部公開ホームページ (<http://migrationdb.jnc.go.jp>) の作成・運用を行った。これにより、核種移行データベースの利用者層が拡大され、国内外の幅広い方々に利用して頂く環境が整備されるとともに、ユーザーからの有益なコメントを適宜反映できる体制も整った。

JNC has developed databases of nuclides migration for safety assessment of high-level radioactive waste (HLW) repository, and they have been used in the second progress report to present the technical reliability of HLW geological disposal system in Japan. The technical level and applicability of databases have been highly evaluated even overseas. To provide the databases broadly over the world and to promote the use of the databases, we have performed the followings: 1) development of tools to convert the database format from geochemical code PHREEQE to PHREEQC, GWB and EQ3/6 and 2) set up a web site (<http://migrationdb.jnc.go.jp>) which enables the public to access to the databases. As a result, the number of database users has significantly increased. Additionally, a number of useful comments from the users can be applied to modification and/or update of databases.

キーワード

熱力学データベース、吸着データベース、拡散データベース、核種移行、安全評価、高レベル放射性廃棄物、変換プログラム、地球化学コード、ホームページ、ダウンロードシステム

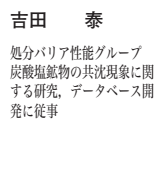
Thermodynamic Database, Sorption Database, Diffusion Database, Nuclide Migration, Safety Assessment, High-Level Radioactive Waste, Conversion Program, Geochemical Code, Home Page, Download System.



笹本 広
処分バリア性能グループ
チームリーダー
副主任研究員
地下水・間隙水化学研究、
データベース開発に従事



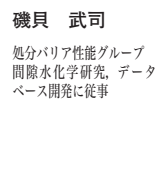
神徳 敬
石川島播磨重工業株式会社
原子力事業部 バックエン
ドプロジェクトチーム



吉田 泰
処分バリア性能グループ
炭酸塩鉱物の共沈現象に関
する研究、データベース開
発に従事



柴田 雅博
処分バリア性能グループ
チームリーダー
副主任研究員
データベース開発、緩衝材
変質劣化研究、核種移行研
究に従事
第一種放射線取扱主任者



磯貝 武司
処分バリア性能グループ
間隙水化学研究、データ
ベース開発に従事



油井 三和
処分研究部次長
主任研究員
地球化学/核種移行研究・
データベース開発・処分技
術開発の総括
理学博士

陶山 忠宏
処分バリア性能グループ
緩衝材変質劣化研究、デ
ータベース開発に従事

1. はじめに

わが国では、使用済み燃料の再処理から発生する高レベル放射性廃棄物は、最終的に地下300m以深の安定な地層中に適切に埋設（地層処分）することとしている¹⁾。地層処分の安全性確保の期間は非常に長期にわたるため、実験により安全性を実証することは困難である。そこで、将来、地層処分された高レベル放射性廃棄物がどのような挙動を示すか、シナリオを作成し、このシナリオに基づきコンピューターシミュレーション等による処分の安全性の評価が行われる。地層処分システムの安全評価では、放射性廃棄物から溶出した核種が地下水により人間の生活環境に運ばれるシナリオが基本であり、このような評価においては、地下水中での放射性核種の溶解度、人工バリア材（ベントナイト）や岩石への放射性核種の収着係数・拡散係数といった核種移行データを網羅した核種移行データベースが必要となる。

サイクル機構では、評価に必要となる核種移行データベースを独自に開発し、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を示す第2次取りまとめに反映させた²⁾。地層処分の性能評価に必要な核種移行データベースは諸外国においても開発が行われている。しかしながら核種移行データを網羅したデータベースは英国³⁾、スイス⁴⁾、米国⁵⁾で開発されている程度であり、サイクル機構が開発したデータベースの技術レベルや有用性は国内だけでなく、海外からも高く評価されている。たとえば、国際機関である経済協力開発機構／原子力機関（OECD/NEA: Nuclear Energy Agency of the Organization for Economic Co-operation and Development）が中心になり進められている熱力学データベース開発プロジェクトに関わるホームページ（<http://www.nea.fr/html/dbtdb/>）の中では、英国、スイスで開発されたデータベースとともにサイクル機構が開発したデータベースも紹介されている。そこで、サイクル機構が開発した核種移行データベースを国内外に幅広く普及し、その活用を促進するための利用環境を整備した。本報では、核種移行データベースの利用環境整備状況について報告する。

2. これまでに整備した核種移行データベース

第2次取りまとめに向けて開発整備した核種移行データベースとしては、①熱力学データベース

（Thermodynamic DataBase: TDB）、②収着データベース（Sorption DataBase: SDB）、③拡散データベース（Diffusion DataBase: DDB）の3つがある。各データベースの概要を以下にまとめる。

(1) 熱力学データベース（JNC-TDB）

熱力学データベースとしては、放射性元素および地球化学元素について、各々、データベース開発を行い、2つのデータベースを整備した。

放射性元素の熱力学データベースは、地下水やベントナイト間隙水中での放射性核種の溶解度や溶存化学種を計算するうえで必要なデータベースである。本データベースの開発にあたっては、アクチニド炭酸錯体、溶解度制限固相の安定性・変遷、核種の酸化還元状態の把握、コロイド影響等に着目し、膨大な文献から熱力学データを抽出した。また抽出されたデータの信頼性について、諸外国や国際機関で開発されたデータベースとの比較検討による現実性・網羅性の確認、データの系統性の確認等を行い、データベースの科学的妥当性を確認した。本データベースは、元素数25、データ数607件を収録している⁶⁾。

一方、地球化学元素の熱力学データベースは、処分が想定されるような地下深部での地下水水質やベントナイト間隙水水質を推定するうえで必要なデータベースである。本データベースの開発にあたっては、地下水水質形成過程の評価やベントナイト間隙水化学の評価上重要な鉱物－水反応等のデータに着目し、データベースを整備した。本データベースは、16種類のガス、195種類の鉱物に関するデータを収録している⁷⁾。これらのデータは、室内における基礎的な実験、フィールドにおける観察結果等をもとにデータの相互比較が行われ、信頼性が確認されている。

(2) 収着データベース（JNC-SDB）

収着データベースは、ベントナイトや岩石に収着する放射性核種の量や、その時の地下水中の放射性核種の濃度を推定するために必要なデータベースである。本データベースの開発にあたっては、核種移行の遅延特性を把握するうえで重要な収着挙動について、バッチ法により得られたデータを対象に膨大な文献から収着データを抽出した。本データベースは、元素数37、データ数19,890件のデータを収録していた⁸⁾が、その後、第2次取りまとめ以降に公開された文献を調査し、37元素中19元素に対し、1,236件の収着分配係数を追加

し、データベースを更新・公開した⁹⁾。

(3) 拡散データベース (JNC-DDB)

拡散データベースは、ベントナイトや岩石中での放射性核種の移行挙動を推定するために必要なデータベースである。第2次取りまとめにおいては、国内に分布する岩石を物質移行および地質学的観点から4種類に分類し、主要岩石に対する拡散データベースを開発した¹⁰⁾。本データベースには304件の実効拡散係数が収録されており、各データに対し、岩種の違いやデータ取得条件(試験方法、溶液条件、温度、雰囲気等)に関わる情報が整備されている。

3. 核種移行データベースの利用環境整備

2.で述べたような第2次取りまとめに向けて開発整備した種移行データベースについては、各々、サイクル機構の技術資料として取りまとめた。熱力学データベースについては、米国地質調査所で開発され、世界的にも汎用されている地球化学コードであるPHREEQE¹¹⁾用のデータベースフォーマットで整備し、公開した。収着データベースについては、市販のMicrosoft社製データベースソフトであるAccessを用いてデータベースを作成し、公開した(図1)。岩石に対する拡散データ

については、現在のところ、電子ファイル形式での公開は行っていない。第2次取りまとめの段階では、基本的に技術資料の形で成果を公開・普及していたが、第2次取りまとめ以降の課題の1つとして、これらサイクル機構が開発した核種移行データベースを国内外に幅広く普及し、その利用促進を図ることが挙げられていた。そこで、この課題に対する対応として、核種移行データベースに関わる外部公開ホームページを作成・運用し、成果のより一層の普及を図ることとした。なお、熱力学データベースのより広範な利用促進を図るため、PHREEQEだけでなく、世界的に幅広く利用されている代表的な地球化学コードでも利用可能にするため、データベースフォーマット変換ツールも開発した。以下に、①フォーマット変換のためのツール開発、②外部公開ホームページの整備について述べる。

(1) フォーマット変換のためのツール開発

溶液中での化学種の濃度(活量)の計算や固相(鉱物等)に対する飽和度の計算等のために用いられる代表的な地球化学コードとしては、WATEQ4F¹²⁾、PHREEQE、PHREEQC¹³⁾、MINTEQA2¹⁴⁾、EQ3/6¹⁵⁾、Geochemist's Workbench¹⁶⁾(GWB)等がある¹⁷⁾。WATEQ4F、PHREEQEおよびPHREEQCは、米

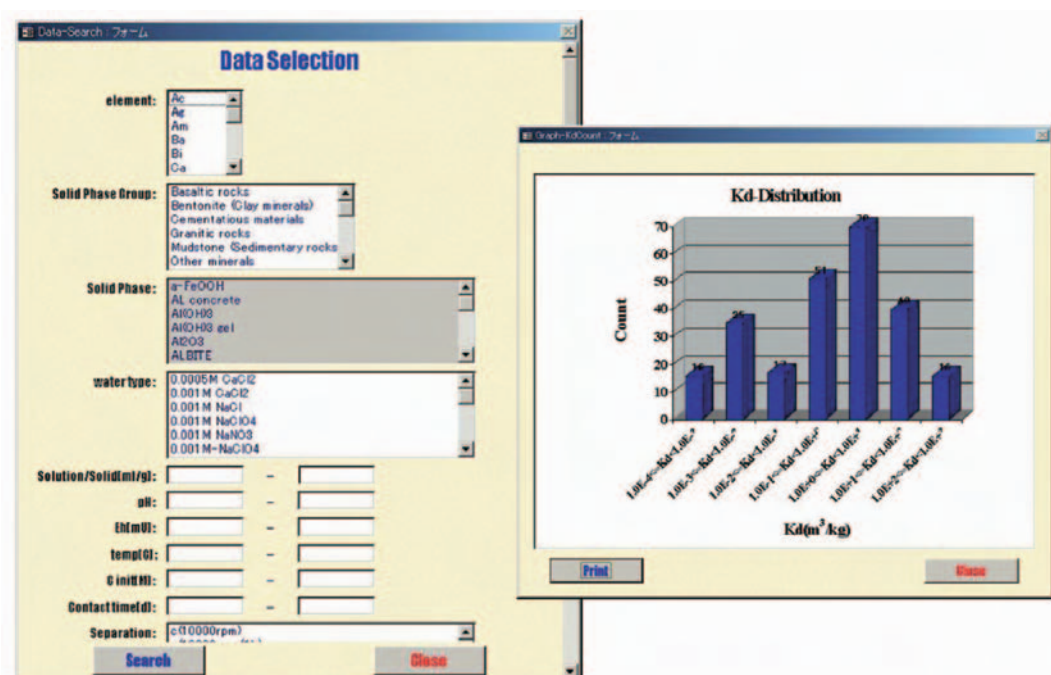


図1 収着データベースの例
データ検索画面(左図)およびデータ検索結果の一例として分配係数(Kd)のヒストグラムを表示した場合(右図)

国地質調査所で開発されたコードであるが、WATEQ系のプログラムの計算機能はPHREEQE系に類似しており、現在の主流はPHREEQE系のプログラムになっている。MINTEQA2は、米国環境保護庁で開発されたコードであり、イオンの収着に関するモデルも組み込まれている。EQ3/6は、放射性廃棄物処分の評価に用いるために米国のローレンスリバモア国立研究所で開発されたコードである。GWBは、米国イリノイ大学で開発されたコードで、近年、汎用されるようになってきている。サイクル機構では、高レベル放射性廃棄物処分の安全評価のため、第1次取りまとめ¹⁸⁾の段階からPHREEQE系のプログラムを利用してきており、熱力学データベース開発にあたってはPHREEQE用のデータベースフォーマットで整備を進めている。フォーマット変換用のツール整備にあたっては、放射性廃棄物処分の分野で普及度が高く、世界的に今後も継続して利用されていく可能性の高いPHREEQC、EQ3/6、GWBを対象にした。なお、PHREEQEからEQ3/6へのデータベースフォーマット変換に関しては、米国ローレンスリバモア国立研究所とサイクル機構との共同研究の枠組みの中で開発整備された変換プログラム(GREEN.EXE)を利用している¹⁹⁾。

今回、PHREEQEからPHREEQCおよびEQ3/6用のデータベースフォーマット変換のためのツールとして、FORTRANによるプログラムを独自に開発した¹⁹⁾。開発されたプログラムは、PQPCN14_5 (PHREEQEからPHREEQCへのデータベースフォーマット変換プログラム) およびPHGWB10 (PHREEQEからGWBへのデータベースフォーマット変換プログラム) である。データベースフォーマットは各々の地球化学コードにより異なるが、共通して収録しているデータは、平衡定数(log K) および活量補正に必要となるパラメータ(イオンサイズパラメータ、WATEQ Debye-Huckelパラメータ)である。平衡定数については、25℃における定数と25℃以外での定数を算出するうえで必要な係数を含む場合(PHREEQEおよびPHREEQC)と、0, 25, 60, 100, 150, 200, 250, 300℃の各温度における平衡定数を含む場合(GWB)があるため、PHREEQEからGWBへのフォーマット変換にあたっては、温度補正式と補正係数をもとに、各温度における平衡定数を算出している。変換プログラムは、PHREEQE用のデータベース

フォーマットが収録している平衡定数および活量補正に必要となるパラメータを各地球化学コード用のデータベースフォーマットに適合するようにデータの並び替えや平衡定数の算出等を自動で行うものである。

以上のような変換プログラムを利用することにより、サイクル機構が開発整備した熱力学データベース(PHREEQE用データベースフォーマット)がPHREEQC、GWB、EQ3/6で利用できるようになった。

(2) 外部公開ホームページの整備

サイクル機構が開発した核種移行データベースを社外一般や海外の幅広い方々にも利用していただくため、処分研究部では、大洗工学センターの情報センター内に独自のサーバーを設置し、熱力学・収着データベースを利用するためのホームページ(<http://migrationdb.jnc.go.jp/>)を外部公開した(2003年8月1日)。本ホームページは、サイクル機構ホームページのトップページ(<http://www.jnc.go.jp>)の「地層処分技術に関する研究開発」あるいは「データベース」の項目からアクセスできる。情報センター内に設置した外部公開用サーバーには、WWWサーバー用ソフトウェアとしてApacheを使用した。以下に公開したホームページの内容と利用方法について述べる。

1) ホームページの構成

① トップページ

トップページを図2に示す。トップページには、データベースの利用にあたっての注意書き等が記されている。また、日本語版・英語版の各コンテンツへの入り口にもなっている。以下、日本語版をもとに各コンテンツについて説明する。

② ホーム

ホームページの概要を記したページであり、ホームページ内の各コンテンツへのリンクが張られている。

③ TDB関連

JNC-TDBの概要を記したページおよびダウンロードにより利用可能なデータファイル一覧を示すページから構成される。概要を記したページからは、TDBに関係する用語解説のページへのリンクも張られている。データファイル一覧を示すページからは、PHREEQE、PHREEQC、EQ3/6、GWBの各フォーマット用のデータベースにアクセスできる。また、OECD/NEAが開発したTDB

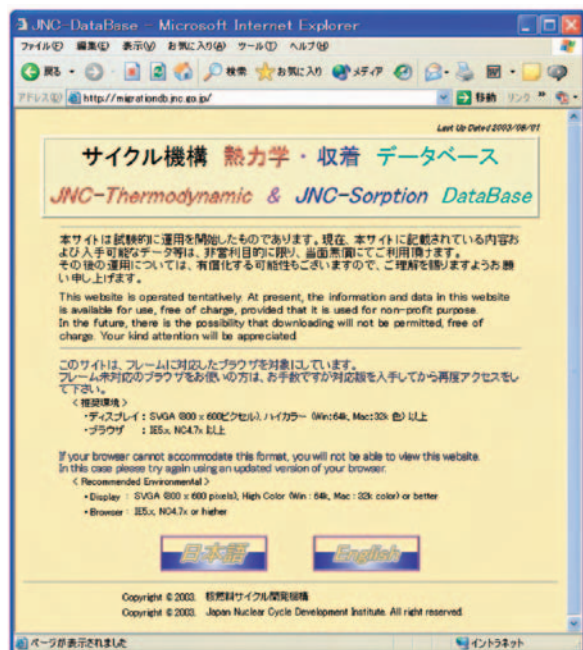


図2 熱力学・収着データベースに関するホームページのトップページ

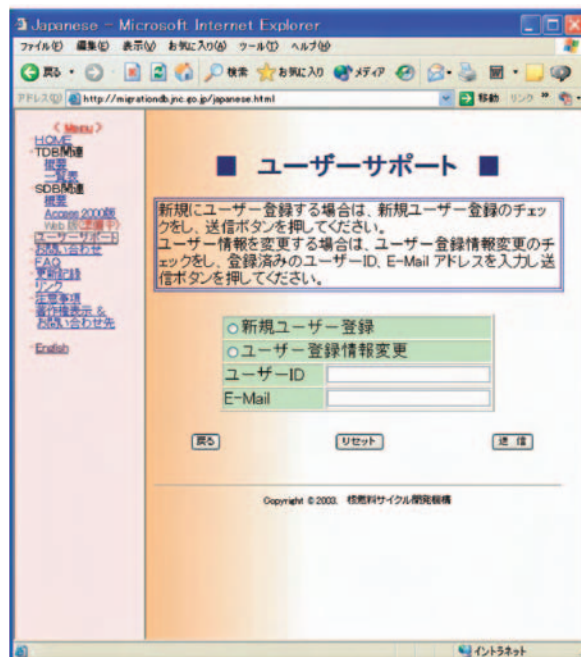


図3 ユーザ登録画面のページ

についても、NEAの承諾を得て、上記4種の地球化学コードで利用可能なフォーマットに変換し、掲載している。

④SDB関連

JNC-SDBの概要を記したページおよびJNC-SDB (Access版) の利用方法を示すページから構成される。

⑤ユーザーサポート

ホームページからデータをダウンロードする際には、ユーザー登録が必要となる(図3)。ここでは、ユーザー登録や登録情報の変更を行うページである。

⑥お問い合わせ

本ホームページに関するユーザーからの意見を収集するためのページである。

⑦FAQ

ユーザーから寄せられた質問やそれに対する回答を掲載するページである。

⑧更新記録

ホームページの更新日や更新内容を掲載するページである。

⑨リンク

熱力学データベースや地球化学コードに関連する他のホームページ、国内の原子力関係機関のホームページへのリンクが張られているページで

ある。

⑩注意事項

本ホームページに掲載されている情報やダウンロードしたデータを利用する際の注意事項として、著作権、免責事項、プライバシーポリシーに関わる内容を掲載しているページである。

⑪著作権表示&お問い合わせ先

サイクル機構の著作権表示および本ホームページに関する問い合わせ先(東海事業所環境保全・研究開発センター処分研究部)を掲載しているページである。

2) データベースのダウンロード方法

ユーザーがデータベースをダウンロードして利用する場合、最初に「ユーザーサポート」のページにおいて、ユーザー登録を行う。ユーザー登録では、e-mail address, user ID (ユーザー側で6～8文字の任意の英数字を設定)、氏名および住所を入力する。データベースをダウンロードするには、「非営利目的に限り、当面无償にて使用することができる」ことに同意し、ユーザー登録したe-mail addressおよびuser IDを入力する。

ホームページ開設に関する案内は、国内向けでは、原子力学会バックエンド部会を通じた学会員への電子メールでの周知等を中心とし、国外向けでは、地球化学コードGWBのユーザーグループへの電子メールでの案内を行った。外部公開ホーム

ページ運用開始後のこれまでの利用実績として、282件のユーザー登録があった(2005年4月19日現在)。内訳は、国外127件、国内155件である。また、ホームページ公開後、外部の専門家からデータの一部に誤りがあることが指摘されたため、速やかに訂正し、修正版に差し替える等の対応を行った。このように、データベースを外部に公開し、これまで以上に幅広い多くの方々が利用できる環境が整うとともに、ユーザーからのコメントを適切に反映する体制も整えた。

なお、外部公開用ホームページの開設にあたっては、情報公開法、著作権法、個人情報保護法(ホームページ開設時には施行されていなかったが予め同法の適用範囲について確認)で規定される内容に留意すると共に、開設後もこれらの法に照らしつつ、ホームページの適切な運用を図っている。

4. おわりに

サイクル機構が開発した核種移行データベースを国内外に幅広く普及し、その活用促進を図るための利用環境整備として、熱力学データベースのフォーマット変換用ツールの開発、外部公開ホームページの整備を行った。データベースフォーマット変換用ツールの開発により、サイクル機構が開発したデータベースをPHREEQE以外の複数の地球化学コードでも利用することが可能となり、ユーザーの拡大、汎用性の拡大を図ることができた。また外部公開ホームページの開設により、サイクル機構が開発した核種移行データベースを国内外の幅広い方々に利用して頂く環境を整備するとともに、ユーザーからのコメントを反映する体制も整えた。

今後は、拡散データベースの利用環境を整備し、ホームページ上での公開を進めるとともに、収着データベースについては、データベース機能の一部であるデータ検索をホームページ上で実施可能なSDB Webシステムの整備を行う予定である。

また、ユーザーの方々からの意見・要望なども参考に、インターネットを通じたデータベースの活用を促進させるとともに、データの拡充や更新を継続して行い、処分事業や安全規制の基盤として、より信頼性の高いデータベース開発整備を進めていく予定である。

謝 辞

核種移行データベースの利用環境整備にあたり、A-Tech株式会社の日笠直樹氏には、JNC-SDB(ACCESS版)の開発にあたりお世話になりました。コンピュータソフト開発株式会社の根山敦史氏には、フォーマット変換用プログラムの開発にあたり尽力して頂きました。また原子力システム株式会社の渡會清高氏、平山勇一氏にはホームページの開設にあたりお世話になりました。以上の方々に深く感謝致します。

参考文献

- 1) 官報：“特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律”(2000)。
- 2) 核燃料サイクル開発機構：“わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—総論レポート”，サイクル機構 技術資料，JNC TN 1410 99-020 (1999)。
- 3) T. G. Heath, D. J. Ilett: “The HATCHES User Manual”, Serco Assurance, Oxfordshire (2004)。
- 4) H. Wolfgang, B. Urs et al.: “Nagra/PSI Chemical Thermodynamic Data Base 01/01”, Universal Publishers, ISBN 1-581112-620-4 (2002)。
- 5) T.J. Wolery: “EQ3NR, A Computer Program for Geochemical Aqueous Speciation Solubility Calculations: Theoretical Manual, User's Guide, and related Documentation (Version 7.0)”, Lawrence Livermore National Laboratory Report UCRL-MA-110662 (3) (1992)。
- 6) M. Yui, J. Azuma et al.: “JNC Thermodynamic Database for Performance Assessment of High-Level Radioactive Waste Disposal System”, Japan Nuclear Cycle Development Institute Technical Report, JNC TN8400 99-070 (1999)。
- 7) R. C. Arthur, H. Sasamoto et al.: “Development of Thermodynamic Databases for Geochemical Calculations”, Japan Nuclear Cycle Development Institute Technical Report, JNC TN8400 99-079 (1999)。
- 8) 瀬谷朝紀，柴田雅博，他：“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”，サイクル機構 技術資料，JNC TN8410 99-050 (1999)。
- 9) 陶山忠宏，笹本 広：“JNC収着データベース (JNC-SDB) の更新：1998～2003年までに公開された文献データの追加”，JNC TN8410 2003-018 (2004)。
- 10) H. Sato: “Diffusivity Database (DDB) for Major Rocks: Database for the Second Progress Report”, JNC TN8400 99-065 (1990)。
- 11) D. L. Parkhurst, D. C. Thorstenson et al.: “PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations”, Rev. U.S. Geol. Survey Water Resources Investigations Report 80-96 (1990)。
- 12) J. W. Ball, D. K. Nordstrom: “User's Manual for WATTEQ4F, with Revised Thermodynamic Database and

- Test Cases for Calculating Speciation of Major, Trace, and Redox Elements in Natural Waters”, U.S. Geol. Survey Open File Report 91-183 (1991).
- 13) D.L.Parkhurst: “Users Guide to PHREEQC- A Computer Program for Speciation, Reaction-Path, Advective-Transport, and Inverse Geochemical Calculations”, U.S. Geol. Survey Water Resources Investigations Report 95-4227 (1995).
 - 14) J.D.Allison, D.S.Brown et al.: “MINTEQA2, A Geochemical Assessment Data Base and Test Cases for Environmental Systems : Vers.3.0 User's Manual”, Report EPA/600/3-91/, Athens, GA: U.S.EPA (1991).
 - 15) T.J.Wolery: “A Software Package for Geochemical Modeling of Aqueous Systems : Package Overview and Installation Guide (Ver.7.0) ”, UCRL-MA-110662 (1). Lawrence Livermore National Laboratory (1992).
 - 16) C.M.Bethke: “The Geochemist's Workbench, Version 2.0, A Users Guide to Rxn, Act2, Tact, React and Gtplot”, Hydrogeology Program. Urbana, IL: University of Illinois (1994).
 - 17) 日本地下水学会編: “地下水水質の基礎”, 理工図書, 189p. (2000).
 - 18) 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).
 - 19) 吉田 泰, 油井三和: “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”, サイクル機構技術資料, JNC TN8400 2002-024 (2003).