

収着・拡散データベースシステム（JAEA-SDB/DDB；Web 版）の基本機能と構成

データ信頼度情報の活用やパラメータ設定への効果的な適用を念頭に、これまで整備してきた収着及び拡散係数のデータベースを発展的に改良・統合することにより、新たな収着・拡散データベースシステムを構築した。以下に、データベースシステムの機能、データ構造、信頼度情報等の両データベースの基本機能・情報を概観する。

1. 収着・拡散データベースの基本機能概要

収着・拡散データベースの高度化にあたっては、今後のパラメータ設定等においてデータベースの効果的かつ効率的な活用を可能とするよう、以下のような要件を念頭に、盛り込むべき機能やデータベース構成等を検討した。

- ・収着分配係数と拡散係数データベースの整合と連携
- ・データの信頼度評価手法と信頼度情報の効果的活用
- ・パラメータ依存性等の把握のためのパラメータ推定や検索・グラフ化機能の拡充
- ・参照すべきデータ/文献の効果的抽出のためのデータ/文献数集計、データ集約表作成

収着/拡散データベースシステムの基本機能と情報を、収着と拡散の両データベースの比較、並びに従来のデータベースに新たに追加した機能・情報の視点で、表 1 に概括的に示す。

表 1 収着データベース/拡散データベース（JAEA-SDB/DDB）の基本機能・情報

	収着データベース(JAEA-SDB)	拡散データベース(JAEA-DDB)
基本データ (データ数)	収着分配係数 Kd(約46,000 件)	実効拡散係数 De(約 600 件) 見かけの拡散係数 Da(約 1,750 件)
対象元素	- 2000 年レポート評価対象元素(Gr-1) - その他重要元素(Gr-2)	同左
対象固相	- ベントナイト/粘土 - 岩石/鉱物 - 土壌、セメント等 (海外データ含む)	- ベントナイト/スメクタイト - 岩石 (現状は国内岩石を対象)
検索機能	元素, 固相, 溶液種類/pH/Eh/イオン強度, 液固比, 分離法, 雰囲気, 温度等	元素, 固相, 試験方法, 溶液種類/pH/イオン強度, イオン電荷, 間隙率, 乾燥密度, スメクタイト密度(ベントナイトのみ), 温度等
グラフ化 機能	- 各種条件に対する Kd のグラフ化 (複数のパラメータ依存性評価) - Kd 分布のヒストグラム	- Da/De/ α /Kd 等を縦軸に, 各種条件や パラメータを横軸にグラフ化 - Da/De の分布のヒストグラム
信頼度情報	ガイドラインに基づく, 個別信頼度評価の結果・根拠(クライテリア I-III)* →信頼度によるデータ抽出/グラフ化機能	主要なデータ項目に対する補足情報として, 実験方法や解析方法などデータ信頼性に係る重要な情報を記載
パラメータ 推定	-	パラメータ間の相関や HTO データからの形状因子に基づく, パラメータ推定 → 実測値/推定値の選択表示機能
その他機能	データ数/文献数集計機能 データ集約表作成機能 ダウンロード機能	同左

*;ベントナイト, 泥岩, 花崗岩及び凝灰岩系に対する主要核種の約 11,000 件の Kd データの信頼度評価結果を, 現時点でデータベースに格納している。

2. 収着・拡散データベースシステム（JAEA-SDB/DDB）の基本フロー

収着・拡散データベースシステムの整備にあたっては、収着と拡散の各々のデータベースの基本的な構成やフローを共通のかつ整合的に検討した。図1に両データベースに共通するデータベースの基本フローを示す。データベースの基本的なフローは、トップページの検索画面で1次/2次検索機能やデータ数集計/文献抽出機能等を活用しつつ、データの抽出・表示を行い、グラフやヒストグラムによる傾向性の把握、データ集約表による抽出データの条件やデータ範囲の把握、データのダウンロードへと展開する。また、データ表示画面において、収着データベースでは信頼度情報の機能へ切り替えることで、信頼度情報を軸にデータ検索・抽出、グラフ化等を行うことが可能となる。一方で、拡散データベースでは、データ表示画面で、実測データのみを対象とするのか、推定値を含めた全データを対象とするのか、検討事項に応じて切り替えて表示することが可能である。

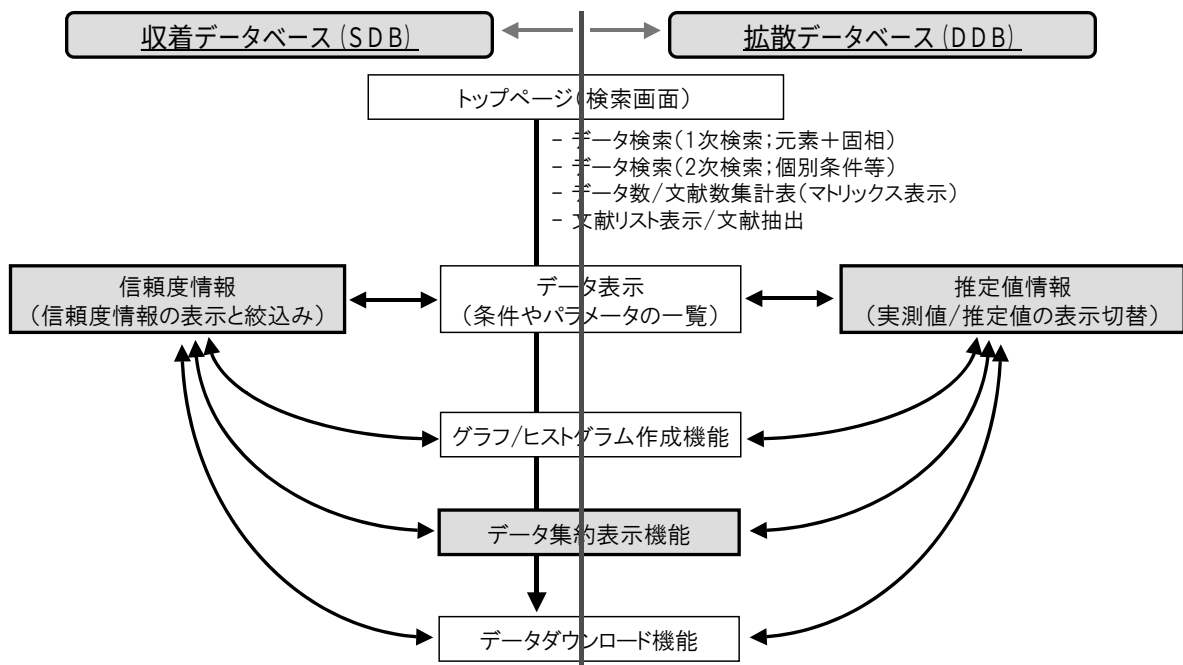


図1 収着・拡散データベースシステム（JAEA-SDB/DDB）の基本フロー

3. 収着データベース（JAEA-SDB）のデータ構成

3.1 基本データシート

収着データベースのデータシートの構造については、従来の収着データベースから大きな変更点はなく、表2に示すとおりである。これまでと同様に、収着分配係数データ、固相や溶液条件等の主要な条件を1次情報とし、これら条件に係るより詳細な補足情報を2次情報（additional information）として階層的に管理している。

表 2 収着データベース (JAEA-SDB) のメインデータテーブル

分類	項目		単位	内容
	Save No.		-	管理番号
元素 情報	Element		-	元素記号(基本検索条件)
	Redox		-	価数
固相 情報	Solid Phase Group		-	固相グループ(基本検索条件)
	Solid Phase		-	岩石, 粘土鉱物, 鉱物等の固相名称
	Additional Information	Specific Surface Area	m ² /g	比表面積
		CEC	meq/100g	陽イオン交換容量(Cation Exchange Capacity)
		chemical/mineral composition	-	化学組成/鉱物組成(PDF 表示)
		Note	-	粒径, 固相産地, 試料前処理条件・方法等
液固比 情報	Liquid/Solid		mL/g	液固比
	Additional Information	Liquid	mL	液相量
		Solid	g	固相量
液相 情報	water type		-	
	Additional Information	Ca	ppm	Ca 濃度
		Na	ppm	Na 濃度
		K	ppm	K 濃度
		Mg	ppm	Mg 濃度
		Cl	ppm	Cl 濃度
		HCO ₃	ppm	HCO ₃ 濃度
		SO ₄	ppm	SO ₄ 濃度
		F	ppm	F 濃度
		SiO ₂	ppm	SiO ₂ 濃度
		Fe	ppm	Fe 濃度
		NO ₃	ppm	NO ₃ 濃度
		ClO ₄	ppm	ClO ₄ 濃度
		ionic strength	mol/L	それぞれの溶存イオン濃度を計算して算出
		Doc	ppm	溶存有機物濃度
		note	-	試験液のタイプ, 名称, 準備方法等
	pH init		-	初期 pH
	pH end		-	最終 pH
	Eh init		mV	初期 Eh
	Eh end		mV	最終 Eh
試験 条件 情報	atm/redox condition		-	試験雰囲気, 使用還元剤等
	C init		mol/L	核種初期濃度
	temp		°C	試験温度
	Contact time		day	試験期間
	Separation		-	固液分離方法
分配 係数 情報	Kd		m ³ /kg	分配係数
	Additional Information	error	m ³ /kg	誤差
		type of information	-	分配係数の形態及び算出方法
	replicates, n		-	試験繰返し数
文献に 関する 情報	Reference		-	データ出典文献
	Additional Information	Author	-	著者
		Year	-	文献年度
		Title	-	タイトル
		Journal	-	雑誌名
		Publisher	-	出版した組織
		Vol	-	巻
		No	-	ナンバー
		Page	-	頁
		Note	-	データベース内の項目に関する補足情報や, それ以外の文献情報。
その他	additional Information		-	分配係数測定に関わる補足的説明

3.2 信頼度情報データシート

収着データベースに含まれる収着分配係数の信頼度評価は、①文献の記載情報の網羅性・追跡性（クライテリアⅠ）、②実験方法や条件の信頼度（クライテリアⅡ）、③データ相互間の整合性（クライテリアⅢ）の大きく3つの視点から設定した評価ガイドラインに沿って実施している。各クライテリア、特に実験方法や条件の信頼度に係るクライテリアⅡは詳細な項目毎に信頼度を評価することとなっており、表3に示すテーブル構造に沿って、信頼度評価データ（各項目の Rating 結果）が管理される。これらのデータをもとに、データベース上では、クライテリアⅡの総合評価結果に基づく、クラス分類（クラス1～6）、クライテリアⅠ及びⅡでの unreliable 評価をメインの信頼度情報として管理・表示を行っている。また、クライテリアⅠ及びⅡの評価根拠は、信頼度評価の追跡性の観点からデータシート及びPDF情報として参照可能とするとともに、クライテリアⅢの評価検討についても、PDF情報として参照可能なものとしている。

表3 収着データベース（JAEA-SDB）の信頼度情報テーブル

クライテリア分類/項目		内容	SDB 関連項目	Rating	
【クライテリアⅠ：情報の網羅性】					
I-a.1	情報の網羅性	Kdと取得条件に係る基本情報の有無	表2の1次情報	Yes/No	
I-a.2	単位の記載	分配係数等の単位情報の有無	同上	Yes/No	
I-b	Kdの表示形式	図, 表, 数値, 対数値	type of information	class 1-6	
【クライテリアⅡ：各情報の記述の適切性】				Rating	重要度
II-a	固相	構成鉱物の組成, 不純物, 表面特性	solid phase, specific surface area, CEC	A, B, C/D	×2
II-b	pHの調整と制御*	pHの制御, pHの測定値, pH緩衝液	pH init, pH end	A, B, C, D	×8
II-c	酸化還元状態*	酸化還元状態の制御, 還元剤	atm/redox condition, redox	A/B, C/D	×8
II-d	最終の溶液組成*	最終試験液組成の分析結果の有無 データ毎の計算評価が必要な場合有	solution composition	A/B, C/D	×8
II-e	温度	温度の制御, 室温での試験	temperature	A/B, C/D	×1
II-f	固液比と粒子サイズ	固相の表面積, 固相重量	solution/solid, specific surface area	A/B, C/D	×2
II-g	収着率	収着率の計算	Kd, solution/solid	A, B, C/D	×2
II-h	核種の初期濃度*	溶解度の以下での初期濃度設定の確認(計算の実施, 類似条件での試験結果も利用)	C init, Solution Composition, pH など	A, B, C/D	×8
II-i	固液分離方法*	固液分離方法, 複数の種類での確認	separation	A, B, C/D	×8
II-j	反応時間*	平衡状態の確認, 収着反応速度(時間依存)データの取得	contact time	A/B, C/D	×2
II-k	攪拌方法	攪拌の有無と方法		A/B, C/D	×1
II-l	核種の添加量	核種添加量の妥当性, 収着等温線の有無	solution/solid, C init,	A, B, C/D	×2
II-m	反応容器	容器材質, 容器壁への収着量の補正		A, B, C/D	×1
II-n	不確実性の評価	繰り返し試験数, 不確実性の幅(誤差)	error, replicates (n)	A, B, C, D	×2
II-o	パラメータ変化	主要パラメータの変動による影響確認	C init, pH init, pH end, solution/solid	A, B, C, D	×8
【クライテリアⅢ：データ相互間の整合性】					
III	データ間の整合性の観点からKdの信頼度を評価* 別の類似した試験条件のKdと明らかに不整合があり, その理由が説明されていない場合はunreliableと分類		Kd	reliable, unreliable	

* unreliable の評価がある項目

4. 拡散データベース（JAEA-DDB）のデータ構成

4.1 基本データシート

拡散データベースのデータシートの構成については、従来整備してきた拡散データベースに対して、緩衝材系データの追加、信頼度に係る情報の付加や拡散係数の関連パラメータの推定手法の拡張など、今回の拡張検討に伴って、表 4 に示すとおりの見直しを行った。収着データベースと同様に、主要条件を 1 次情報とし、より詳細な補足的情報を 2 次情報（additional information）として階層的に情報を管理している。

表 4 拡散データベース（JAEA-DDB）のデータテーブル

分類	項目	単位	内容
番号	Record No.	-	管理番号
元素 情報	Element	-	元素記号
	Species/Redox	-	化学種
	Species Info	-	化学種の決定方法(推定又は実測のいずれか)
	Ion charge	-	イオン電荷
固相 情報 (1)	Solid type	-	固相グループ
	Solid	-	岩石, 粘土鉱物, 鉱物等の固相名称
	Solid information	-	岩石:産地, 種類, 鉱物組成, 前処理の有無など ベントナイト:スメクタイト含有率, ケイ砂混合率など
試験 方法	Experimental method	-	試験方法(In diffusion 法, through diffusion 法など)
	Method Info	-	試験方法に係る付加情報
固相 情報 (2)	Dry Density (g/cm ³)	g/cm ³	乾燥密度
	Porosity	%	間隙率
	Smectite density	g/cm ³	部分スメクタイト密度(ベントナイトのみ)
	Smectite content	%	スメクタイト含有率(ベントナイトのみ)
	Sand mixture	%	ケイ砂混合率(ベントナイトのみ)
	Density/Porosity Info	-	固相に係る付加情報
拡散 係数 情報	De	m ² /s	実効拡散係数
	De Info	-	実効拡散係数導出に係る付加情報
	Da	m ² /s	見かけの拡散係数
	Da Info	-	見かけの拡散係数導出に係る付加情報
	Rock capacity factor (RCF)	-	収着容量(保持因子)
	RCF info	-	収着容量導出に係る付加情報
	Kd	m ³ /kg	収着分配係数
	Kd Info	-	収着分配係数導出に係る付加情報
	D ₀	m ² /s	自由水中の拡散係数
	D ₀ Info	-	自由水中の拡散係数に係る付加情報
	Formation factor (FF)	-	形状因子
	FF Info	-	形状因子導出に係る付加情報
	Geometric factor (Gf)	-	幾何学因子
	GF Info	-	幾何学因子導出に係る付加情報
液相 情報	Solution	-	試験溶液種類
	Solution Info	-	試験溶液種類や調整に係る付加情報
	Ionic strength	mol/L	イオン強度
	Concentration of K ⁺ (mol/L)	mol/L	K ⁺ の濃度
	Concentration of Na ⁺ (mol/L)	mol/L	Na ⁺ の濃度
	Concentration of Ca ²⁺ (mol/L)	mol/L	Ca ²⁺ の濃度
	Concentration of Cl ⁻ (mol/L)	mol/L	Cl ⁻ の濃度
	Concentration of CO ₃ ²⁻ (mol/L)	mol/L	イオン強度計算のため, CO ₃ ²⁻ とHCO ₃ ⁻ の合計値を記載
	Concentration of SO ₄ ²⁻ (mol/L)	mol/L	SO ₄ ²⁻ の濃度
	pH	-	pH 値
	pH Info	-	pH 調整等に係る付加情報

表 4 拡散データベース (JAEA-DDB) のデータテーブル (続き)

分類	項目	単位	内容
試験条件情報	Redox condition	-	雰囲気条件, 酸化還元条件
	Redox Info	-	雰囲気条件, 酸化還元条件に係る付加情報
	Tracer	-	トレーサ情報
	Tracer Info	-	トレーサ情報に係る付加情報
	Diffusion time	s/hr/d	拡散時間
	Time Info	-	拡散時間に係る付加情報
	Temperature	degC	試験系の温度
	Temperature Info	-	温度に係る付加情報
文献情報	Reference	-	文献を示す記号的表記
	Author	-	著者名
	Title, Vol., Num. etc.	-	タイトル, 巻, 号など
	Publication Year	-	発行年
その他	Notes	-	関連する参考文献情報などの補足情報
	Additional QA information	-	データ品質に係る補足情報

4.2 信頼性情報の導入

拡散データベースに含まれるデータの信頼性に関して、試験手法や関連パラメータなどデータベース構造が複雑であるため、収着データベースのようなガイドラインに基づく体系的な評価は容易ではなく、まずは、信頼性に係る重要な情報をデータテーブル (表 4) の関連項目に盛り込むことを検討した。具体的には、表 5 に例示するように、試験方法、パラメータ導出、試験条件等の拡散データ取得の信頼性に係る情報を、原子力学会標準なども参考としながら、各項目の付加情報として記載した。

表 5 信頼性情報を付加したデータベース項目と記載内容の例

DDB 項目	内容	付加情報 (Additional Info) への信頼性に係る情報の記載例
試験方法	Through-diffusion 法 (TD 法) や In-diffusion 法 (ID 法) 等の試験法	拡散試験の基本的な方法/体系に関する情報 (パラメータ算出は各パラメータ項目に、個々の試験条件制御は条件項目に記載)。TD 法の場合、フィルターの有無、フィルター溶液循環の有無、濃度制御の方法、環境条件 (pH や Eh) の制御方法、ID 法の場合、トレーサ塗布法、環境条件の制御方法などを記載
拡散係数と関連パラメータ	実効拡散係数 (De)	破過曲線の直線部からの導出/非定常部分も含めた解析のいずれか、内部濃度プロファイル等も含めた評価を行っているか、定常状態をどのように評価判断しているか (上流側の濃度変化、濃度プロファイル確認など)、解析上の境界条件の取扱い (一定濃度/濃度変化考慮、フィルター補正方法) などを記載
	見かけの拡散係数 (Da)	境界濃度一定の解/全量溶解の解の選択と適用法 (塗布とレーザ濃度や溶解度の考慮、表面付近のプロットや2重プロファイルの考慮) などを記載
	収着容量 (α)	破過曲線の Time-lag 法/内部プロファイルからの導出など、導出方法や前提などを記載
試験条件	雰囲気/酸化還元条件	雰囲気制御や酸化還元条件の調整、制御、確認の方法、還元剤の種類や濃度などを記載
	トレーサ	安定元素/放射性元素、キャリアの有無、mol 濃度、液性、分析手法等を記載。ID 法の場合、塗布液の濃度/量/組成、TD 法の場合、高濃度セルのトレーサ濃度や維持の方法などを記載
	拡散時間	拡散試験期間を、TD 法の破過曲線や ID 法の濃度プロファイルとの関係も含めて記載

4.3 関連パラメータの導出/推定法

拡散データベースに含まれる拡散係数及び関連パラメータについては、関係性をもつパラメータ群であり、今回のデータベース構築にあたっては、特に、緩衝材系データを中心に、従来から検討されてきたパラメータの導出/推定法を適用し、データベース中の関連パラメータの導出/評価を検討した。具体的には、実測データ等に基づき関連パラメータ評価を行い、データベース上に実測値と推定値の判別機能とともに導入したほか、緩衝材系拡散データを、統一的に取り扱うための指標として部分スメクタイト密度の定義を導入した。

(1) 拡散関連パラメータの関係と導出/推定法

データベースで対象としている拡散係数は、定常状態での実質的な拡散係数を表す実効拡散係数 (D_e ; effective diffusion coefficient) と非定常状態での収着遅延の効果を含む見かけの拡散係数 (D_a ; apparent diffusion coefficient) が主要なパラメータであり、その他、以下の式に示すように、これらの拡散係数は、複数の遅延因子へと分解することができる。

$$D_e = FF \cdot D_0 = \varepsilon \cdot GF \cdot D_0 = \varepsilon \cdot \frac{\delta}{\tau^2} D_0 \quad (1)$$

$$D_a = \frac{D_e}{\alpha} = \frac{D_e}{\varepsilon + \rho K_d} \quad (2)$$

ここで、 D_0 ; 自由水中の拡散係数, FF ; 形状因子(Formation Factor), ε ; 間隙率, GF ; 幾何学因子(Geometric Factor), δ ; 収れん度(constrictivity), τ^2 ; 屈曲度(tortuosity), α ; 収着容量(rock capacity factor), ρ ; 乾燥密度, K_d ; 分配係数である。

これらの関連パラメータの拡散試験法(Through-diffusion /In-diffusion 法)を起点とした導出フローを図2に示す。岩石と緩衝材のそれぞれについて、実験手法やそこで実測評価されるパラメータの種類に応じて、関連するパラメータが導出されるが、赤色の矢印は、今般導入したベントナイト系データに特有なフローであり、次項で述べる部分スメクタイト密度を導入し、 D_e を推定値として導出する場合のフローである。

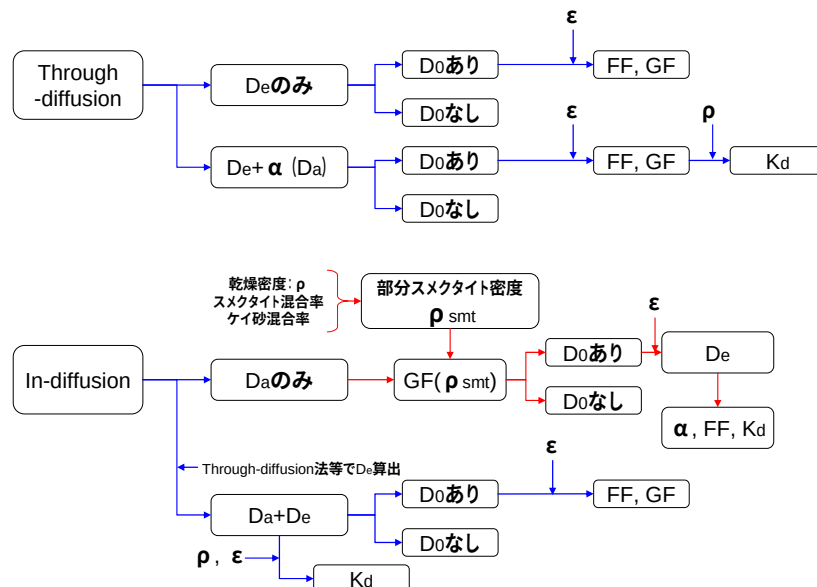


図2 拡散試験方法と関連パラメータの導出/推定フロー

(2) 緩衝材系データに関する部分スメクタイト密度の導入

拡散データベースに含まれる緩衝材ベントナイトの拡散データは、ベントナイトの種類、ケイ砂混合率、圧縮密度などの様々な固相条件下でのデータが含まれる。ベントナイト中の拡散挙動が主にその主成分であるスメクタイトに支配されるとの前提のもとに、固相条件の差異を補正する手法が、従来から部分スメクタイト密度として検討されており、緩衝材系データの導入に伴い、表 4 に示したように、この部分スメクタイト密度をデータベースに導入した。これらの条件においては、一般に固相の含有量を示すために乾燥密度を使用する。しかし、ベントナイトの種類によりスメクタイトの含有率が異なるため、試料全体の乾燥密度(ρ_{net})とスメクタイト集合体部分の乾燥密度は異なる。部分スメクタイト密度(ρ_s)は、スメクタイト以外の成分を石英と仮定した場合、試料全体の乾燥密度(ρ_{net})、石英の密度(ρ_q)、ベントナイトのスメクタイト含有率(f_s)、ケイ砂混合率(f_q)により、以下の式で表される。

$$\rho_s = \frac{(1 - f_q)f_s\rho_{net}}{1 - \frac{\rho_{net}}{\rho_q}(f_q - (1 - f_q)(1 - f_s))} \quad (3)$$

さらに、上記図 2 のフローにおいて、In-diffusion 法で得られた緩衝材ベントナイトに対する見かけの拡散係数から、関連パラメータを導出するため、幾何学的因子(GF)とスメクタイト密度との関係を導出した。トリチウム水をトレーサとして、Kunigel-V1, Kunipia-F 及びこれらに対するケイ砂混合系を対象とした拡散試験から得られた D_a , D_e の実測値と、間隙率や自由水中の拡散係数から幾何学因子 (GF) を求め、図 3 に示す関係図より、次式の相関式を導出し、これにより図 2 のフローに沿って関連パラメータを導出した。すなわち、幾何学因子が化学種によって変化しないとの前提のもと、データベース中の関連パラメータ導出を行った。

$$GF(\rho) = 0.6015 \times e^{-1.3115\rho} \quad (\rho ; \text{部分スメクタイト密度}) \quad (4)$$

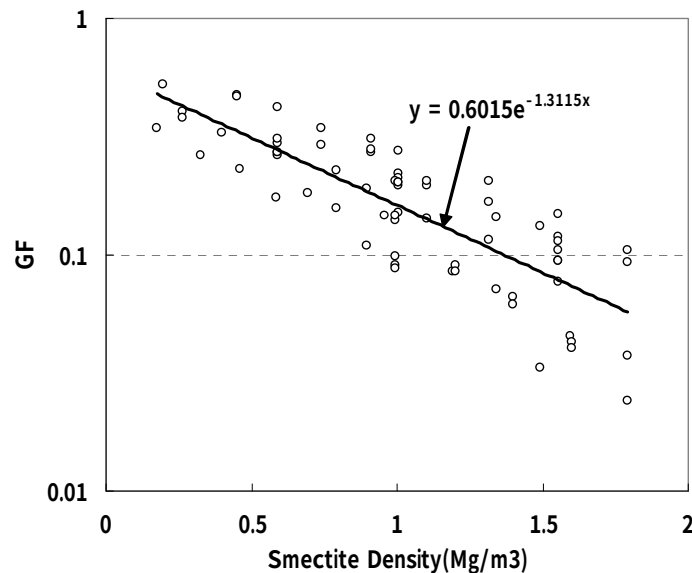


図 3 幾何学因子 (GF) と部分スメクタイト密度の相関