

緩衝材性能最適化に関する 方法論の基礎的研究（Ⅳ）

—研究概要—

（核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書）

1999年2月

株式会社 三菱総合研究所

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

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Naka-gun, Ibaraki 319-1184

Japan

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

1999

緩衝材性能最適化に関する
方法論の基礎的研究 (IV)
(研究委託内容報告書)

大久保博生*

要 旨

本年度は、まず前年度までに作成した総合評価フレームに基づき、情報の不確実性を考慮した場合についても最適ケイ砂混合率が得られるように求解プロセスを改良・拡張した。

次に、核種吸着性能に関するデータ情報の不確実性を定量的手法によって、分析した。

最後に、改良化した総合評価フレームを用いて、吸着性能の不確実性が最適ケイ砂混合率に与える影響を分析した。

本報告書は、株式会社三菱総合研究所が核燃料サイクル開発機構の委託により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室：2000年レポートチーム 研究調整グループ

*株式会社 三菱総合研究所

A Fundamental Study on Optimization for Performance of Buffer Material : Part (IV)

Hiroo Ohkubo*

Abstract

This year, first, based on the previous calculation framework, a calculation process was improved and extended to obtain the optimal ratio of mixing bentonite with silica sand under uncertainty of data information.

Secondly, the uncertainty on nuclide sorption data was analyzed by some quantitative method.

Finally, the above improved calculation framework was used to study the effect on the optimal ratio of mixing bentonite with silica sand caused by uncertainty of sorption data.

This work was performed by Mitsubishi Research Institute, Inc. under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : R&D Coordination Group, Geological Isolation Research Project

* Mitsubishi Research Institute, Inc.

目 次

	頁
1. はじめに	1
1.1 目的	1
1.2 背景及び概要	1
2. 多変量最適化フレームの改良	2
2.1 不確実性要因の検討	2
2.2 制約条件の付加	3
2.3 モデルへの適用	4
2.3.1 制約条件式の適用	4
2.3.2 グラフ作成機能への追加	5
2.4 制約条件を加味した最適化の結果	5
2.5 不確実性解析フレームの作成	9
3. 核種吸着性データ等の不確実性を考慮した総合評価の検討・解析	10
3.1 モデルの不確実性	10
3.2 データ情報の不確実性	12
3.2.1 単独成分の Cs 分配係数	12
3.2.2 ケイ砂混合ベントナイトの Cs 分配係数	14
3.2.3 最適ケイ砂混合率の不確実性分析	14
3.3 その他の不確実性	17
4. おわりに	18
参考文献	19

表 目 次

	頁
表 2-1 ケイ砂混合緩衝材評価フレーム上の不確実要素	2
表 2-2 最適化計算ケースの設定	5
表 3-1 ゲーム論的最適化目標別最適ケイ砂混合率	17

目 次

	頁
図 2-1	緩衝材の特性とケイ砂混合率及び乾燥密度との関係 4
図 2-2	最適化求解フレーム（モデルの設定画面） 6
図 2-3	最適化計算結果－総合評価関数のケイ砂混合率依存性－ 7
図 2-4	乾燥密度とその上下限値のプロット 8
図 3-1	ケイ砂混合率と推定された Cs 分配係数（相対値）の関係 11
図 3-2	表面錯体モデルを用いたケイ砂混合ベントナイトへの Np の分配係数値とケイ砂混合率の関係 12
図 3-3(1)	モンモリロナイトの Cs 分配係数頻度分布の 対数正規分布への当てはめ 13
図 3-3(2)	石英の Cs 分配係数頻度分布の対数正規分布への当てはめ 13
図 3-4	ケイ砂混合ベントナイトへの Cs 分配係数の不確実性 15
図 3-5	Cs 分配係数の不確実情報を反映した総合評価関数 16

1. はじめに

1.1 目的

高レベル放射性廃棄物の地層処分で使用される緩衝材の候補材料として、ベントナイトが有望視されている。緩衝材は、ベントナイトのみで構成するよりもケイ砂を混合する方が、熱伝導性や経済性等の観点から有利であると考えられている。しかし、ベントナイトにケイ砂を混合する場合には、緩衝材としての最も重要な機能である水理特性や核種の吸着性能に影響を与えることが予想される。

本研究は、緩衝材として最適な性能となるベントナイト/ケイ砂の混合率を総合的及び理論的に求めるため、その手法について検討を行うものである。

1.2 背景及び概要

緩衝材としてベントナイトの性能を評価する場合、透水係数、水分拡散係数、核種の見かけの拡散係数、平衡膨潤圧力、圧縮強度、熱伝導率等のパラメータが挙げられる。

平成 7～9 年度^{(2)~(4)}は、最適ケイ砂混合率を総合的に評価するため、これらのパラメータを対象として、それぞれの経験式による多変数最適化フレームを作成した。また、市販の計算ソフト (MS-EXCEL Solver 機能) を用いて解析を行うため、多変数最適化フレームを改良するとともに、求解プロセス (非線形最適化計算コード) の検討及び試解析を実施した。しかしながら、情報の不確実性を考慮した場合については、最適解を求めるまでには到っていない。

平成 10 年度は、これまでに検討されている求解プロセス (非線形最適化計算コード) について、情報の不確実性を考慮した場合についても、最適解が得られるようにプロセスを拡張する。また、ケイ砂の混合率による核種吸着性能への影響についても検討を行い、緩衝材の最適ケイ砂混合率について総合評価を実施する。

2. 多変量最適化フレームの改良

2.1 不確実性要因の検討

JNC 殿の第2次とりまとめ第1ドラフト（以下、第1ドラフトと略記⁽¹⁾）に基づき、前年度までに検討してきた緩衝材総合評価フレームにおいて考えられる不確実要因を表2-1にリスト・アップした。

表 2-1 ケイ砂混合緩衝材評価フレーム上の不確実要素

- ① 製作性から求められる制約条件：（EX.最大乾燥密度／締固めエネルギー＜ある値）
- ② 可塑性／耐震強度のケイ砂混合率依存性に関するデータ
- ③ 流出、廃棄体沈下、ガス移行、オーバーパック腐食膨張の各々の抑止という総合的観点からとらえた膨潤圧増の効用上限值
- ④ 透水係数の含水比依存性に関するデータ（今まで通り、乾燥密度を介した推計でもよければ不要）
- ⑤ 化学的緩衝性
 - ・ 定量的評価指標（緩衝性維持時間、 $\text{Na}^+/\text{Ca}^{2+}$ 比 etc.）
 - ・ その指標のケイ砂混合率依存性に関するデータ
- ⑥ 核種吸着性
 - ・ 評価対象核種全ての分配係数の（含水比、）ケイ砂混合率依存性に関するデータ
- ⑦ 平衡膨潤圧力、水分拡散係数、透水係数、見かけの拡散係数（含、分配係数）の温度依存性データ
- ⑧ コロイドフィルトレーション機能（有効粘土密度 ≥ 0.7 → 下限制約値の変動）
- ⑨ ケイ砂混合の空間的不均一性
- ⑩ 含水比の空間分布特性
- ⑪ 各評価項目間の相対的重視度（従来は、パラメータ扱い）
- ⑫ その他、従来のデータは H3 レポート⁽⁵⁾時点の古いものであるため、その後 H12 レポートに向けて取得されている新たな追加データ等の検討の必要性

これより、本評価フレームにおいては、

- (a) (独立) 評価項目の追加・削減の影響を加味し得ること
- (b) 何らかの制約条件を加味し得ること
- (c) データ情報の不十分性が何らかの形で評価に反映し得ること

が望まれる。

このうち、本総合評価フレームの改良に当っては、上記(b)(c)の2点を対象に行うものとした。

2.2 制約条件の付加

図 2-1 に基づき、前年度検討した最適ケイ砂混合率求解プロセスに下記の制約条件を付加した。

- (1) ブロック成形可能条件

$$\rho_d \leq 2.0 \quad (2.1)$$

ここで、 ρ_d : 乾燥密度 (g/cm^3)

- (2) 現地締め固め可能条件

$$\rho_d \leq f(\rho_{d\max}(Rs, P), Rs, P, w) \quad (2.2)$$

ここで、 $\rho_{d\max}(Rs, P)$ は最大乾燥密度で、ケイ砂混合率 Rs (%)、締め固め圧力 P (MPa) の関数で、文献(5)の測定データを用いて次の推計式によって同定する。

<1式> (推計式として採用)

$$\rho_{d\max}(Rs, P) = a_0 + a_1 \times Rs + a_2 \times P + a_3 \times Rs \times P \quad (2.3)$$

1.8364	.42310E-2	.20168E-2	-.1166E-4
(126.77)	(10.04)	(8.00)	(-1.22)

重相関係数 : 0.9906

標準偏差 : 0.0162

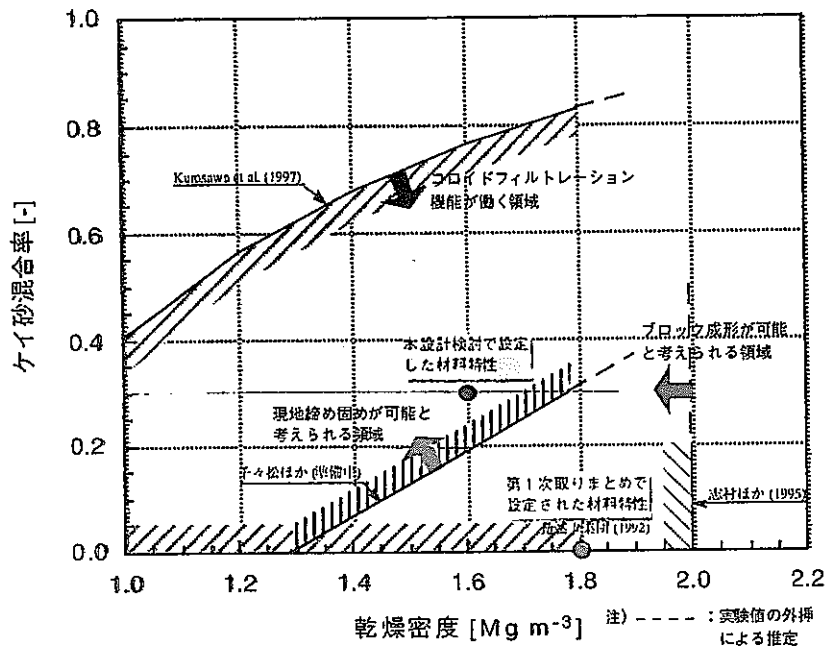


図 2-1 緩衝材の特性とケイ砂混合率及び乾燥密度との関係
出典：(1)

(3) コロイドフィльтраシオン機能保持条件

$$\rho_b \geq 0.7 \quad (2.4)$$

ここで、 ρ_b は有効粘土密度 (g/cm^3) で、次式で定義される。

$$\rho_b \equiv \frac{1 - R_s}{\frac{1}{\rho_d} - \frac{R_s}{2.7}} \quad (2.5)$$

ただし、 R_s : ケイ砂混合率 [—]

即ち、(2.4)式、(2.5)式を一つにまとめると、以下のようになる。

$$\rho_d \geq \frac{1}{\frac{1 - R_s}{0.7} + \frac{R_s}{2.7}} \quad (\equiv \rho_{d \min}) \quad (2.4')$$

2.3 モデルへの適用

2.3.1 制約条件式の適用

2.2 節の制約条件を前年度検討した最適化解析フレームへ追加し、モデルの改良を行った。

改良した最適化求解フレーム (モデルの設定画面) を図 2-2 に示す。

2.3.2 グラフ作成機能への追加

グラフ作成機能に ρ_{dmax} 、 ρ_b 又は ρ_{dmin} 、及び ρ_{dreg} を出力する機能を追加した。ここで、 ρ_{dreg} は多変量回帰式で推計した乾燥密度 ρ_d である。

2.4 制約条件を加味した最適化の結果

前節までの検討結果に基づき、制約条件を加味した最適化計算を表 2-2 のケースに対して行った。その結果を図 2-3 に示す。本年度加えた制約条件はこのケースでは効いておらず（図 2-4 参照：各制約条件のシャドウプライス=0）、最適ケイ砂混合率は前年度と同じである。

表 2-2 最適化計算ケースの設定

	各評価項目間の重視度 (ウェイト)	その他の条件
基本ケース	全項目均等	飽和時の止水性 α_5 のウェイトを入れた場合の基本ケース（前年度）と同じ（但し、 $w=10\%$ 、 $P=20\text{MPa}$ ）
ウェイト等 変更ケース	熱伝導性、核種吸着性を 他の項目のそれぞれ 2 倍、4 倍に増加	再冠水時間上限値を 200 年から 600 年 に変更する以外は基本ケース（上記） と同じ（但し、 $w=10\%$ 、 $P=20\text{MPa}$ ）

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1	最適化フレームの作成													
2	1. 計算条件													
3	最小値 最大値 設定値													
4	制約条件(データ変更可)													
5	含水比w													
6	締め固め圧力P													
7	クレーン混合率ps													
8	2. 関係式の係数													
9	定数項													
10	乾燥密度ρd													
11	触圧係数σ													
12	触圧係数λ													
13	触圧係数μ													
14	平均圧力係数													
15	水分係数D													
16	透水係数k													
17	見かけの拡張係数H(Da)													
18	見かけの拡張係数Hc(Da)													
19	見かけの拡張係数Hc2(Da)													
20	見かけの拡張係数Am241(Da)													
21	3. 適用関数の最小値, 最大値, ウェイト													
22	最小値 最大値 ウェイト													
23	2. 統計的安定性α1													
24	触圧係数α2													
25	シール性α3													
26	不能止水性α4													
27	透止水性α5													
28	換気吸着性α6													
29	4. 信頼的安定性													
30	安全係数β													
31	5. 換気吸着性													
32	(1) 換気換算パラメータ													
33	換気換算パラメータW(m³/h)													
34	換気換算パラメータφ(-)													
35	固相体長期溶解速度J(s/m²·h)													
36	固相体中の質量分率fi(-)													
37	換算材厚δ(m)													
38	カラス固相体1本当り面積(m²)													
39	(2) 換気換算パラメータ													
40	C10(s/m²)													
41	β(Ci/s)													
42	γ(Ci/m²)													
43	Kd(m³/kg)													
44	ηKd/γ: 単位面積													
45	Dai(D/D0)													
46	ηFi(単位面積)													
47	Fi(1)近似的													
48	Fi(2)													
49	λi													
50	Tl/2i													
51	ωi													
52	Kd(Mont,Ca)													
53	Kd(Quartz,Ca)													
54	Kd(Ca)													
55	Kd(Mont,Ho)													
56	Kd(Quartz,Ho)													
57	Kd(Ho)													
58	新築期率φ													
59	6. 追加制約条件													
60	ブロック成形可能条件													
61	7. 現地固め可能条件													
62	乾燥密度ρdmax													
63	B. コロイドフィルトレーション機能保持条件													
64	有効粘土密度αb													
65	換気換算パラメータの下限													
66	定数項													
67	a1 a2 a3 a4 a5 a6 a7 p dmax													
68	B. コロイドフィルトレーション機能保持条件													
69	有効粘土密度αb													
70	換気換算パラメータの下限													

図 2-2 最適化求解フレーム (モデルの設定画面)

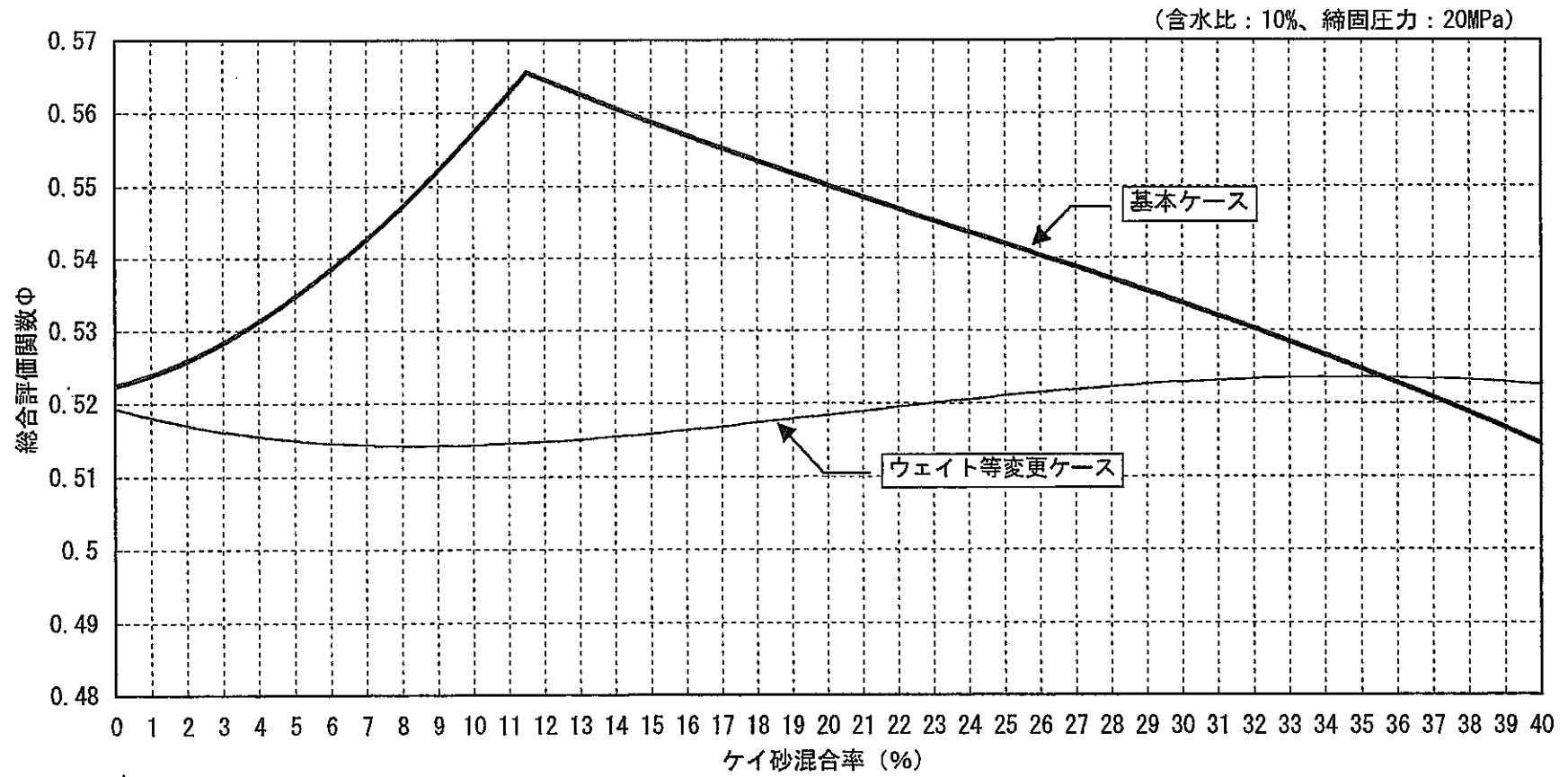


図 2-3 最適化計算結果—総合評価関数のケイ砂混合率依存性—

(含水比 : 10%、締固圧力 : 20MPa)

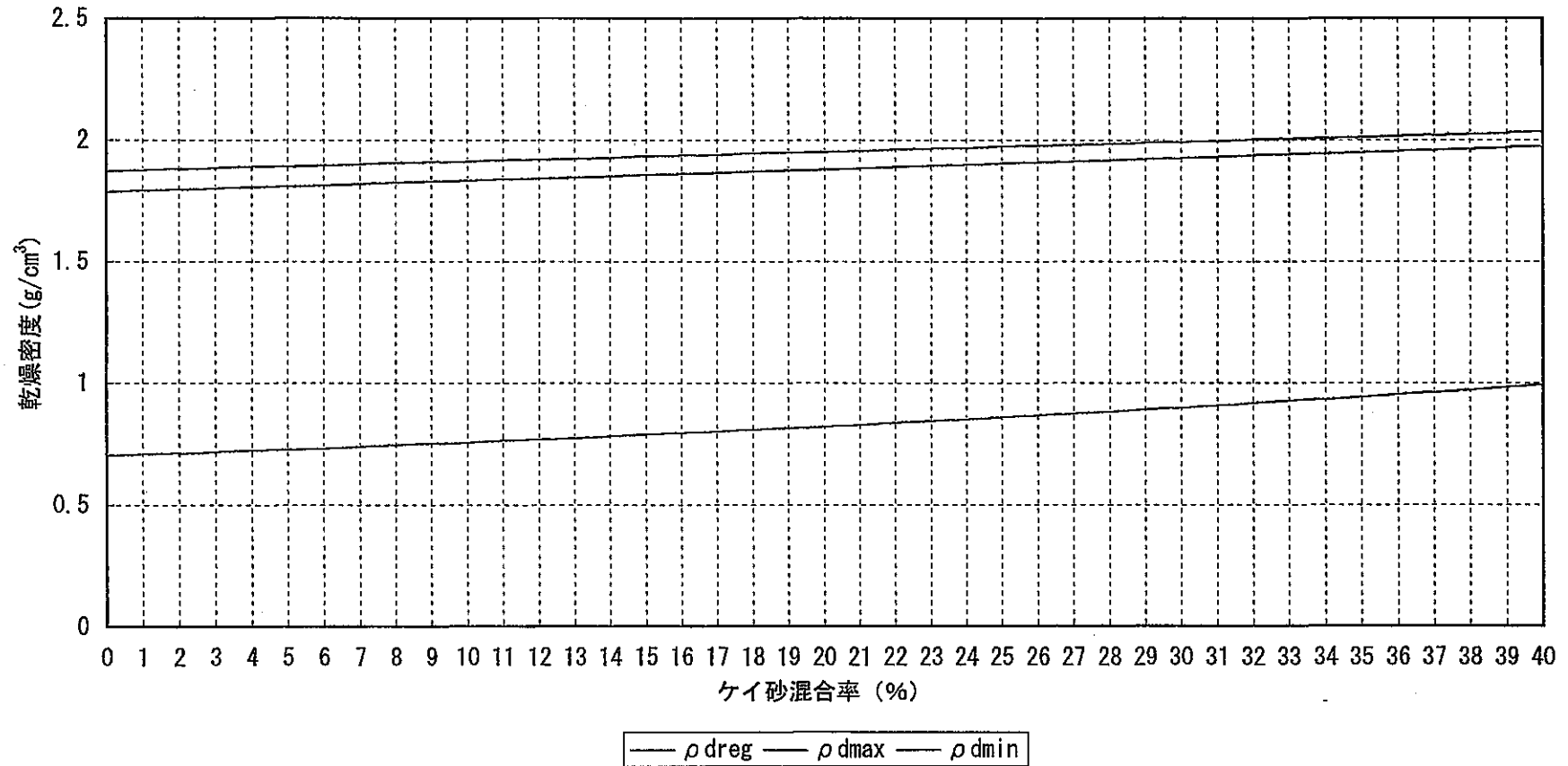


図 2-4 乾燥密度とその上下限値のプロット

2.5 不確実性解析フレームの作成

多変量解析モデルで推計している諸量は次のとおりである。

- 1)一軸圧縮強さ σ
- 2)熱伝導率 λ
- 3)平衡膨潤圧力 P_s
- 4)水分拡散係数 D
- 5)透水係数 K
- 6)見かけの拡散係数 Da (H^3 、 Tc^{99} 、 Np^{237} 、 Am^{241})
- 7)乾燥密度 ρ_d
- 8)最大乾燥密度 ρ_{dmax}

これまでは、上記の諸量を用いて各評価指標の多変量回帰式を作成してきた。本年度は今まで作成した回帰式から求められる値を基準値とした場合、この基準値の上側のデータと下側のデータにグループ分けを行い、それぞれのグループで多変量回帰式を作成し、上側のグループによる回帰式がデータのバラツキの上限を、下側のグループによる回帰式がデータのバラツキの下限をそれぞれ表していると考え、総合評価関数を計算することとした。

3. 核種吸着性データ等の不確実性を考慮した総合評価の検討・解析

3.1 モデルの不確実性

吸着概念モデルについては、前年度報告書付録 A⁽⁴⁾ や文献⁽⁹⁾ の新しいアプローチ法も含め様々のモデルが提示されている。

本年度は、まず Cs について、吸着メカニズムに関する前年度の理論展開⁽⁴⁾に引き続き、イオン交換反応理論をもとに、ケイ砂混合によるベントナイトの分配係数がどのように変化するかを検討した。次に、イオン交換では説明できない核種として Np を取り上げ、表面錯体モデルをもとに、ケイ砂混合によるベントナイトの分配係数の変化を検討した。文献^{(10)~(12)}に基づくデータ並びにモデルを用いた分析の結果より、

①ケイ砂混合に伴う Cs の分配係数の低下は、図 3-1 に示すように、高々 20%程度であること

②ケイ砂混合に伴う Np の分配係数の低下は、図 3-2 に示すように、ほぼ線形的変化を示すこと

が明らかにされた。

これらの異なるモデル概念から理論的に導かれる分配係数の値と実験データ解析結果とを相互に比較・評価することが今後の課題と考えられる。

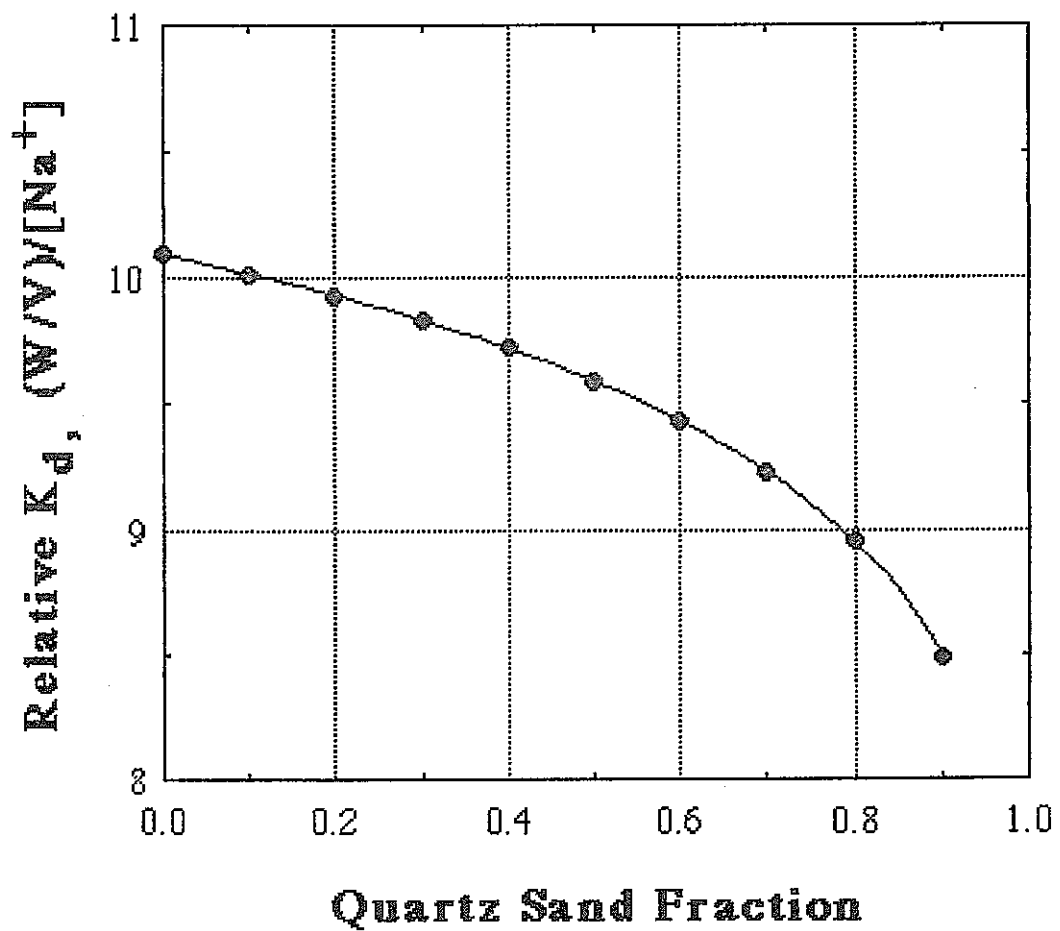


図 3-1 ケイ砂混合率と推定された Cs 分配係数（相対値）の関係

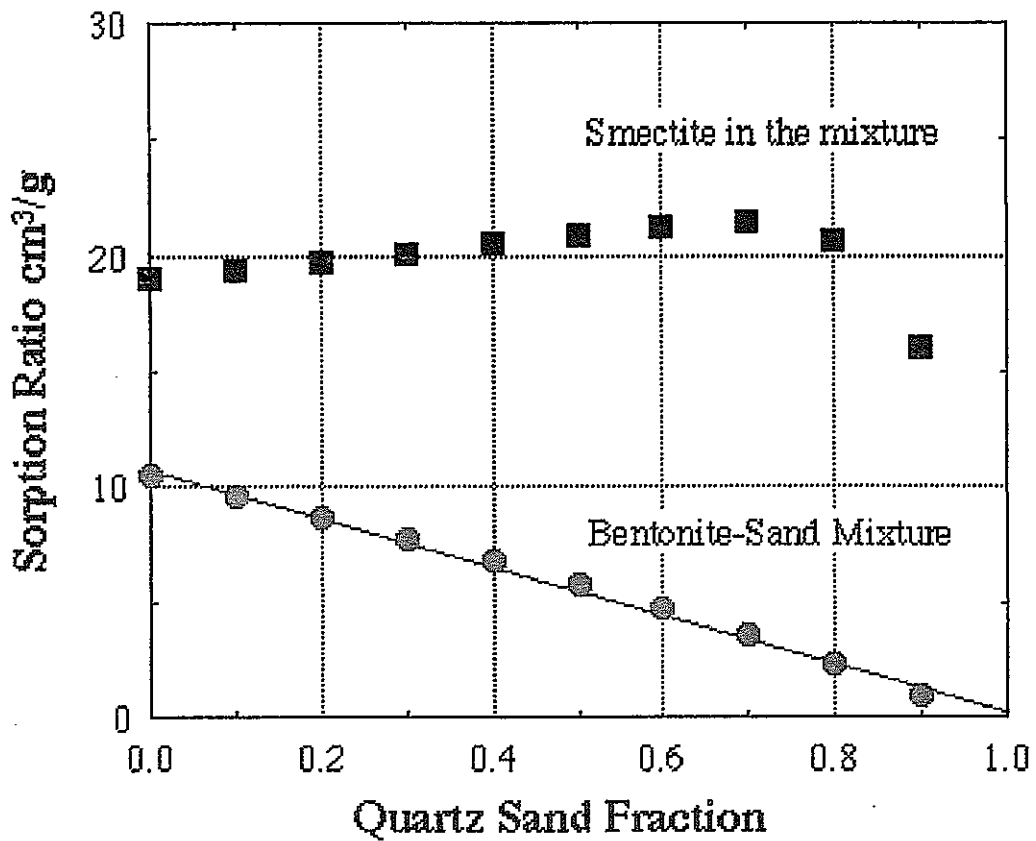


図 3-2 表面錯体モデルを用いたケイ砂混合ベントナイトへの
Np の分配係数値とケイ砂混合率の関係

3.2 データ情報の不確実性

ここでは、JNC 殿が第 1 ドラフトにおいて採用している“一定 K_d モデル”に基づくデータ情報の不確実性について Cs を対象に検討を行った。

3.2.1 単独成分の Cs 分配係数

OECD/NEA の収着データベース SDB (Ver.2.0) ⁽⁸⁾ から、ケイ砂およびモンモリロナイト単独の分配係数の分布を求めた。

図 3-3 に、フィッティングした対数正規分布を示す。

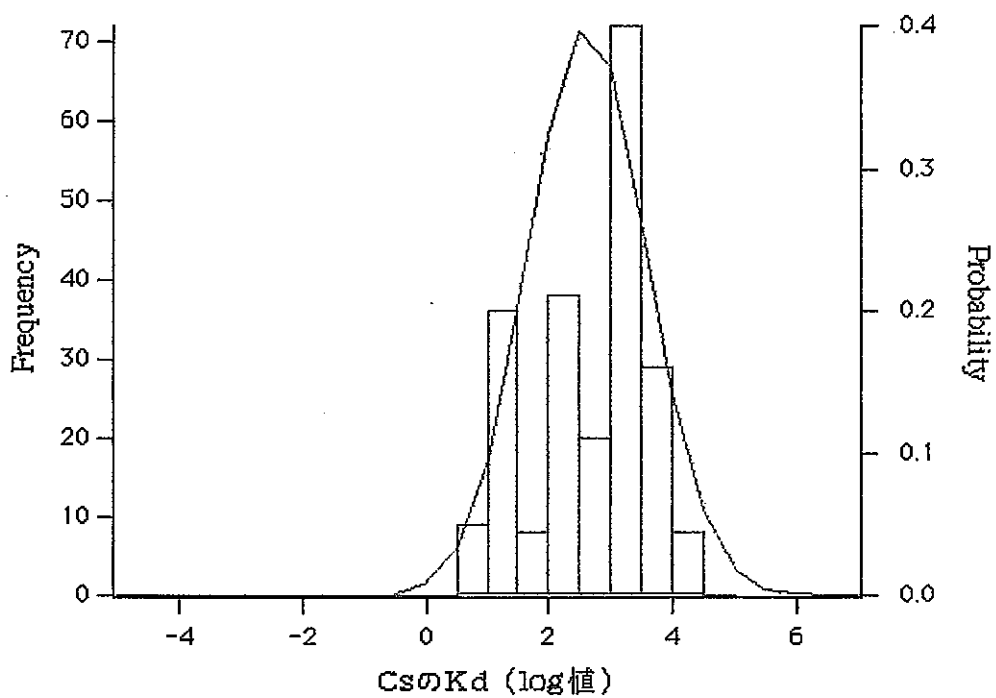


図 3-3(1) モンモリロナイトの Cs 分配係数頻度分布の対数正規分布への当てはめ

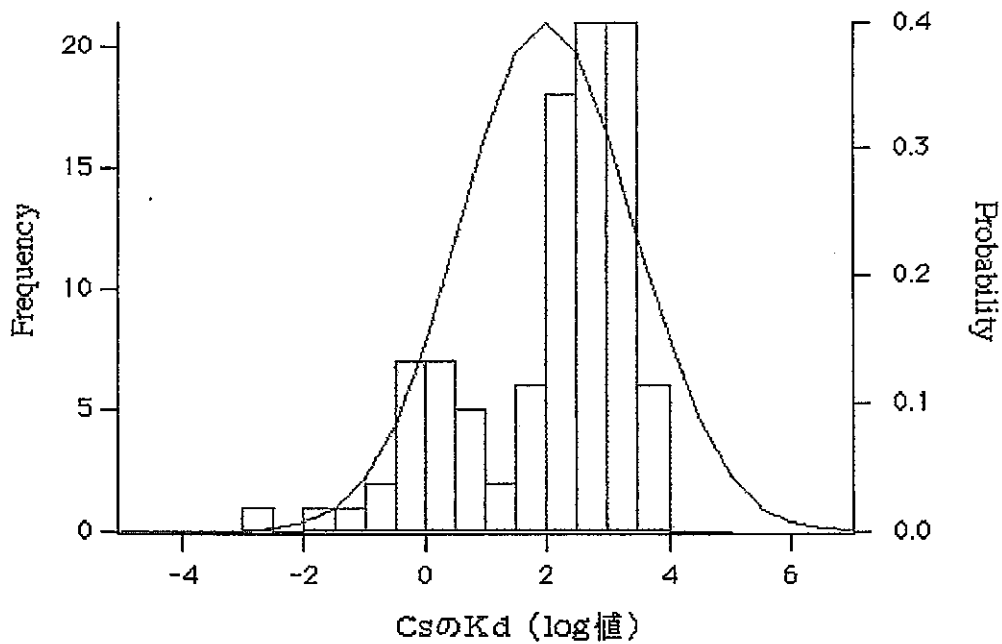


図 3-3(2) 石英の Cs 分配係数頻度分布の対数正規分布への当てはめ

3.2.2 ケイ砂混合ベントナイトの Cs 分配係数

この対数正規分布でフィッティングした確率密度関数を使って、ケイ砂混合ベントナイトの Cs 分配係数の最大、最小、平均を単純に求めた（図 3-4 参照）。

3.2.3 最適ケイ砂混合率の不確実性分析

ケイ砂混合率 R_s ($0\% \leq R_s \leq 100\%$) のベントナイトに対する核種 i の分配係数 $K_{d,i}(R_s)$ は、厳密には前年度報告書 1.4.1 項で指摘した問題点並びに R_s の大きな領域では非線形的になり得る核種もある（図 3-1 参照）ものの、混合物系の加成性が仮定できるなら、近似的に、

$$K_{d,i}(R_s) = \left(1 - \frac{R_s}{100}\right) \cdot K_{d,i}^{\text{Mont}} + \frac{R_s}{100} \cdot K_{d,i}^{\text{Quartz}} \quad (3.1)$$

ここで、

$K_{d,i}^{\text{Mont}}$: 純粋モンモリロナイト（もしくは、クニピア F）に対する核種 i の分配係数

$K_{d,i}^{\text{Quartz}}$: 石英に対する核種 i の分配係数

と表現し得ると考えられる。

このため、すでに総合評価値算定プログラムに設定されている H3 レポート⁽⁵⁾並びに JNC 殿提供実験データ⁽⁶⁾⁽⁷⁾に基づく見かけの拡散係数算定式に基づく不確実性解析（2.5 節参照）と並列的に、(3.1) 式に基づく K_d 値（Cs 分配係数の不確実性解析；図 3-4 参照）より求める拡散係数算定式を用いた最適ケイ砂混合率の不確実性解析を行った。

その検討結果によると、図 3-5 に示すように、総合評価関数 Φ には、データ情報の数値幅が反映された結果、最適ケイ砂混合率 R_s^* にも対基準ケース（Cs の K_d は本年度平均値）比 24%~30%程度の幅が算定された。

但し、Cs の K_d が基準（本年度平均値）より小さい領域（図 3-5 の着色部に対応）で変動する場合には、線量当量率の変動が小さいため、「核種吸着性」のウェイトが増加しても、対基準ケース（Cs の K_d は本年度平均値）比 8%~20%程度の幅に縮小されている。

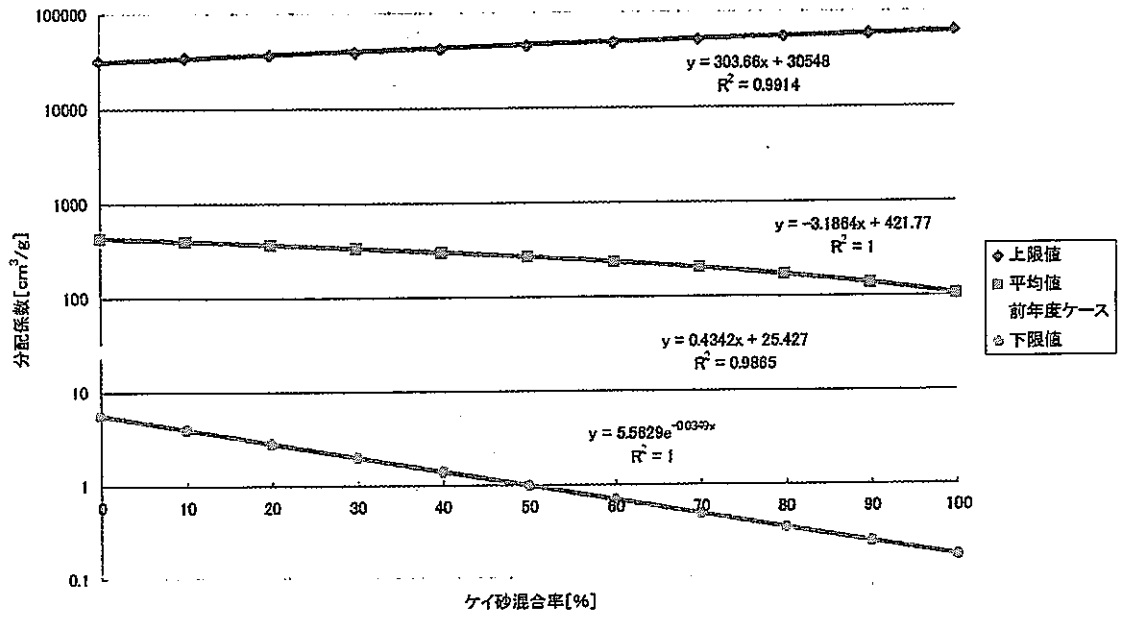


図 3-4 ケイ砂混合ベントナイトへの Cs 分配係数の不確実性

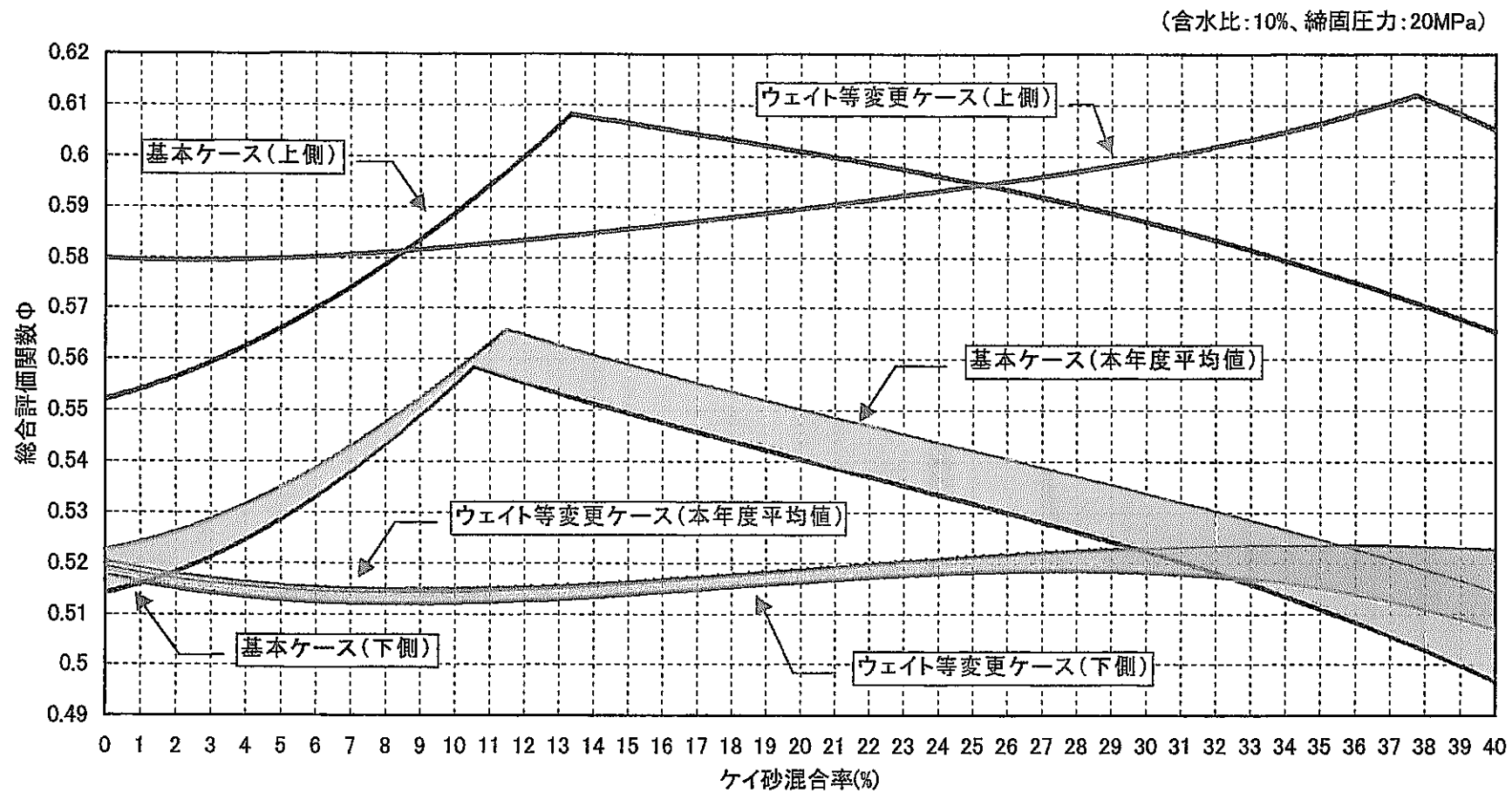


図 3-5 Cs 分配係数の不確実情報を反映した総合評価関数

その中からユニークな最適解を決定する方法として、ゲーム論的基準がいくつか用意されている⁽¹³⁾。この考え方を本最適化問題に適用すると、表 3-1 のようになる。

今後は、不確実データの変動幅に何らかのウェイト付け（例えば、確率密度関数）が設定し得る場合についても取り扱えるよう、最適解求解アルゴリズムを一般化することが望まれる。

表 3-1 ゲーム論的最適化目標別最適ケイ砂混合率

基準	Rs*[%]	
	基本ケース	ウェイト等 変更ケース
①平均効用最大化 (Laplace 基準)	11.50 (前年度)	34.56 (前年度)
	11.50 (本年度)	34.44 (本年度)
②最小効用の最大化 (Wald 基準)	10.56	27.67
③最大効用の最大化 (楽観的基準)	13.33	37.73

3.3 その他の不確実性

最適ケイ砂混合率への影響が大きいと考えられるその他の要因として、現地締め固め可能条件 (2.2) 式の右辺の関数型 f の不確実性に関する検討を行った。その結果、

- ①現地締め固め可能領域が狭小となる場合にはその制約条件によって最適ケイ砂混合率が規定され得ること
- ②その制約条件の厳しさを定量的に把握する一つの指標として、(制約が厳しくなるほどその絶対値が大きくなることより) シャドウ・プライスが有効に活用し得ること

が明らかとなった。

4. おわりに

本年度に実施した検討項目は以下の通りである。

- (1) 前年度までに検討された最適ケイ砂混合率の求解プロセス（非線形最適化計算コード）について、情報の不確実性を考慮した場合についても最適解が得られるようにプロセスの改良・拡張を実施した。
- (2) 核種吸着性能に関するデータ情報の不確実性を定量的に把握した。
- (3) (1)で拡張された総合評価フレーム及び求解プロセスを用いて、(2)で分析した核種吸着性能の不確実性が緩衝材の最適ケイ砂混合率に与える影響を解析・評価した。

今後の課題として、以下のものが指摘し得る。

- (1) 不確実情報下の最適化問題における最適解求解アルゴリズムの一般化
- (2) (1)で改良化された評価フレームに、より多くの核種に対するベントナイトの吸着機能の（理論的解析結果としての）評価値を不確実性も加味して組み込んだ場合の最適ケイ砂混合率の変化についてのケーススタディの実施

参 考 文 献

- (1) PNC : 「地層処分研究開発 第 2 次取りまとめ 第 1 ドラフト」 PNC TN1412 98-013(1998).
- (2) (株)三菱総合研究所 : 「緩衝材性能最適化に関する方法論の基礎的研究」 PNC ZJ1222 96-008(1996).
- (3) (株)三菱総合研究所 : 「緩衝材性能最適化に関する方法論の基礎的研究 (II)」 PNC ZJ1222 97-007(1997).
- (4) (株)三菱総合研究所 : 「緩衝材性能最適化に関する方法論の基礎的研究 (III)」 PNC ZJ1222 98-007(1998).
- (5) 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」 PNC TN 1410 92-081(1992).
- (6) H. Sato et al. : 「Effect of Dry Density on Diffusion of Some Radionuclides in Compacted Sodium Bentonite」 J. Nucl. Sci. Tech., 29(9), pp873-882(1992).
- (7) H. Sato et al. : 「Study on Retardation Mechanism of ^3H , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{237}Np and ^{241}Am in Compacted Sodium Bentonite」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.294, pp403-408(1993).
- (8) K.V.Ticknor and B.Rüegger : 「A Guide to the NEA's Sorption Data Base, Version 2.0」 OECD/NEA, September (1989).
- (9) K. Kawamura et al. : 「New Approach for Predicting the Long Term Behavior of Bentonite : The Unified Method of Molecular Dynamics and Homogenization Analysis」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.506, pp359-366(1998).
- (10) T.Ohe and M.Tsukamoto : 「Geochemical Properties of Bentonite Pore Water in High-Level-Waste Repository Condition」 Nucl.Technol., Vol.118, pp49-57, Apr. (1997).
- (11) T.Ohe, M.Tsukamoto, T.Fujita, R.Hesbol and H-P.Hermansson : "Temperature and pH dependence of Np(V) sorption on bentonite", 1993 International Conference on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation, Prague, pp197-205 (1993).
- (12) J.Westall : 「MICROQL II. Computation of Adsorption Equilibria in BASIC」 Swiss Federal Institute of Technology, Duebendorf, Sept. (1979).
- (13) 西田 : 「ゲームの理論」 日科技連 (1973).

A Fundamental Study on Optimization for Performance of Buffer Material : Part (IV)

— Summary —

(REPORT ON RESULT OF JNC-COMMISSIONED RESEARCH)

February, 1999

Mitsubishi Research Institute, Inc.

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

|| Japan Nuclear Cycle Development Institute

1999

A Fundamental Study on Optimization for Performance of Buffer Material : Part (IV)

Hiroo Ohkubo*

Abstract

This year, first, based on the previous calculation framework, a calculation process was improved and extended to obtain the optimal ratio of mixing bentonite with silica sand under uncertainty of data information.

Secondly, the uncertainty on nuclide sorption data was analyzed by some quantitative method.

Finally, the above improved calculation framework was used to study the effect on the optimal ratio of mixing bentonite with silica sand caused by uncertainty of sorption data.

This work was performed by Mitsubishi Research Institute, Inc. under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : R&D Coordination Group, Geological Isolation Research Project

* Mitsubishi Research Institute, Inc.

緩衝材性能最適化に関する
方法論の基礎的研究 (IV)
(研究委託内容報告書)

大久保博生*

要 旨

本年度は、まず前年度までに作成した総合評価フレームに基づき、情報の不確実性を考慮した場合についても最適ケイ砂混合率が得られるように求解プロセスを改良・拡張した。

次に、核種吸着性能に関するデータ情報の不確実性を定量的手法によって、分析した。

最後に、改良化した総合評価フレームを用いて、吸着性能の不確実性が最適ケイ砂混合率に与える影響を分析した。

本報告書は、株式会社三菱総合研究所が核燃料サイクル開発機構の委託により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室：2000 年レポートチーム 研究調整グループ

* 株式会社 三菱総合研究所

TABLE OF CONTENTS

	page
1. Introduction	1
1.1 Objective	1
1.2 Background and Summary	1
2. Improvement on Multivariate Optimization Framework	2
2.1 Discussion on Uncertainty Factors	2
2.2 Addition of constraints	3
2.3 Application to the Model	4
2.3.1 Application of constraints	4
2.3.2 Addition to the Graphical Presentation System	5
2.4 Result of Optimization with the Constraints	5
2.5 Development of Framework for Uncertainty Analysis	9
3. Discussion and Analysis on the Total Assessment under Uncertainty of Nuclide Sorption Data and Others	10
3.1 Uncertainty of Model	10
3.2 Uncertainty on Data Information	12
3.2.1 Cs Distribution Coefficient of Each Component	12
3.2.2 Cs Distribution Coefficient of Bentonite Mixed with Silica Sand	14
3.2.3 Uncertainty Analysis on Optimal content of Silica Sand	14
3.3 Other Uncertain Factros	17
4. Concluding Remarks	18
References	19

CONTENTS OF TABLES

	page
Table 2-1 Uncertainty factors in the assessment framework on buffer material mixed by silica sand.....	2
Table 2-2 Calculation cases for optimization.....	5
Table 3-1 Optimal content of silica sand based on the game theory.....	17

CONTENTS OF FIGURES

		page
Fig.2-1	Relationship between content of silica sand and dry density with characteristics of buffer materiel	4
Fig.2-2	A worksheet of the improved optimization framework.	6
Fig.2-3	Calculation result of optimization - objective function as a function of content of silica sand -	7
Fig.2-4	Plot of dry density and its upper / lower limits	8
Fig.3-1	Estimated Cs distribution coefficient (relative value) as a function of quartz sand fraction	11
Fig.3-2	Np distribution coefficient for bentonite-sand mixture as a function of quartz sand fraction, derived by using surface complexation model	12
Fig.3-3(1)	Frequency distribution of Cs distribution coefficient in montmorillonite fitted by log-normal distribution function ..	13
Fig.3-3(2)	Frequency distribution of Cs distribution coefficient in quartz fitted by log-normal distribution function	13
Fig.3-4	Uncertainty of Cs distribution coefficient on bentonite mixed with silica sand	15
Fig.3-5	Objective function including uncertainty of Cs distribution coefficient ·	16

1. Introduction

1.1 Objective

Sodium-bentonite is considered to be the most attractive buffer material in the HLW disposal system. It is said that the sodium bentonite mixed with silica sand could be better due to the improvement of heat conductivity and an economical point of view. But, it is also expected that the sodium bentonite, when mixed with silica sand, would adversely impact the most significant properties such as hydraulics and nuclide sorption.

This study aims to discuss on a synthetic and theoretical approach for seeking the optimal ratio of mixing bentonite with silica sand as a best performance of buffer material.

1.2 Background and Summary

The performance of buffer material can be evaluated quantitatively by using some parameters such as hydraulic conductivity, water diffusion coefficient, apparent diffusion coefficient for nuclide, equilibrium swelling pressure, compression strength and heat conduction rate.

In the Heisei 7th to 9th fiscal years^{(2)~(4)}, a multivariate Optimization framework, using empirical equations for the above parameters respectively, has been developed to make a total assessment for an optimal content of silica sand. And, the multivariate optimization framework was improved to use an open calculation code (named MS-EXCEL Solver function), and then the discussion on how to reach an optimal solution (by using the calculation code on nonlinear optimization) and some trial analyses have been demonstrated .

However, it has not yet been considered to get an optimal solution under uncertainty of data information .

Therefore, this year, first, the above developed framework (or calculation code on nonlinear optimization), will be extended to obtain the optimal solution under uncertainty of data information. Then, through the discussion on the impact of content of silica sand on performance of nuclide sorption, a total assessment will be made concerning optimal content of silica sand in buffer material.

2. Improvement on Multivariate Optimization Framework

2.1 Discussion on Uncertainty Factors

Based on the first draft for JNC's second report (called first draft of H12 report)⁽¹⁾ uncertainty factors which could be considered in the total assessment framework on buffer material discussed past years were listed up in Table 2-1.

Table 2-1 Uncertainty factors in the assessment framework on buffer material mixed by silica sand

- ① restriction imposed from the view point of manufacture (EX. maximum dry density divided by tightening energy should be greater than some value).
- ② data on elasticity/earthquake-proof strength as a function of content of silica sand
- ③ upper limit imposed on the utility of increasing swelling pressure from the total view points of decreasing the chances such as flowing out, waste package sinking, gas transport and overpack corrosion/expansion
- ④ data on hydraulic conductivity as a function of content of water (not necessary if dry density can be used as a parameter)
- ⑤ chemical buffer ability
 - quantitative index (such as time for keeping buffer ability, $\text{Na}^+/\text{Ca}^{2+}$ ratio etc.)
 - data on the above index as a function of content of silica sand
- ⑥ nuclide sorption
 - data on distribution coefficient of all the nuclides as a function of (content of water and) content of silica sand
- ⑦ data on equilibrium swelling pressure, water diffusion coefficient, hydraulic conductivity and apparent diffusion coefficient (including distribution coefficient) as a function of temperature
- ⑧ colloid filtration (effective clay density greater than 0.7 ; this lower limit may be not 0.7 but another value)
- ⑨ heterogeneous mixing of silica sand
- ⑩ space distribution of content of water
- ⑪ relative weighting factor (or importance) for each assessment item (this has been treated as a parameter)
- ⑫ Addition (or substitution) of new data for H12 report to (for) old data used in H3 report⁽⁵⁾

It is desirable to evaluate the effects of

- (a) addition and/or exclusion of an (independent) assessment item,
- (b) introducing some constraints and
- (c) insufficiency of data information.

This year, the improvement of total assessment framework was focused on the above (b) and (c).

2.2 Addition of constraints

Based on the concept of restrictions shown in Fig.2-1, three constraints were newly introduced in the previously improved optimization process for content of silica sand.

- (1) Permissible region satisfying block manufacture condition

$$\rho_d \leq 2.0 \quad (2.1)$$

where ρ_d : dry density (g/cm³)

- (2) Permissible region satisfying tightening-at-site condition

$$\rho_d \leq f(\rho_{dmax}(Rs, P), Rs, P, w) \quad (2.2)$$

where $\rho_{dmax}(Rs, P)$: maximum dry density as a function of content of silica sand Rs(%), and tightening pressure P(MPa), identified by the regression equation with the experimental data⁽⁵⁾ :

< eq.1 > (adopted in this study)

$$\rho_{dmax}(Rs, P) = a_0 + a_1 \times Rs + a_2 \times P + a_3 \times Rs \times P \quad (2.3)$$

1.8364	.42310E-2	.20168E-2	-.1166E-4
(126.77)	(10.04)	(8.00)	(-1.22)

multiple correlation coefficient : 0.9906

standard deviation : 0.0162

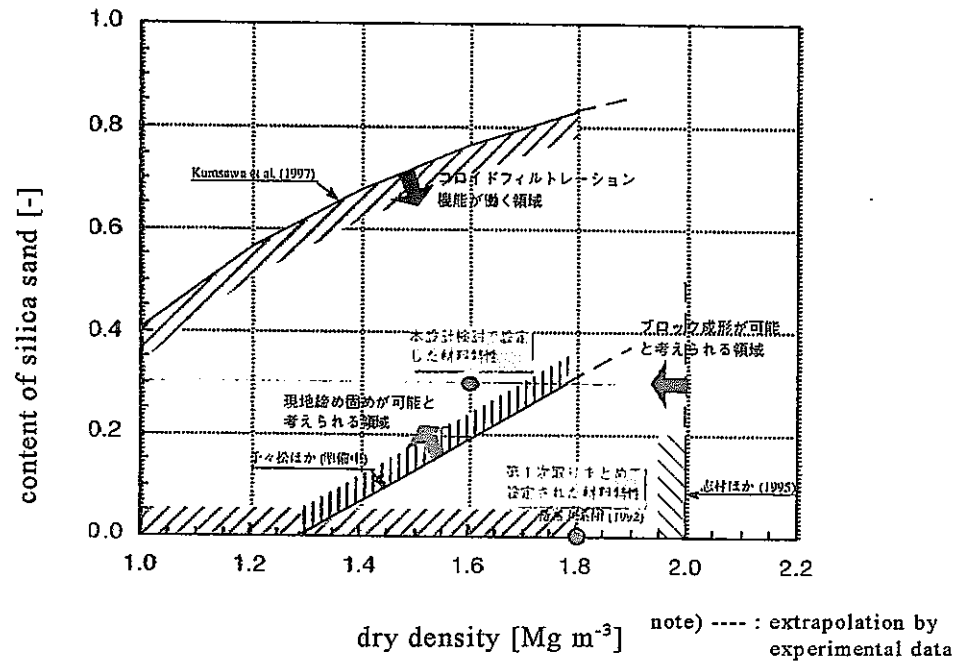


Fig.2-1 Relationship between content of silica sand and dry density with characteristics of buffer material
 source : (1)

(3) Permissible region keeping colloid filtration

$$\rho_b \geq 0.7 \tag{2.4}$$

where ρ_b : effective clay density(g/cm^3), defined by

$$\rho_b \equiv \frac{1 - R_s}{\frac{1}{\rho_d} - \frac{R_s}{2.7}} \tag{2.5}$$

where R_s : content of silica sand [-]

or, reduced to

$$\rho_d \geq \frac{1}{\frac{1 - R_s}{0.7} + \frac{R_s}{2.7}} \quad (\equiv \rho_{dmin}) \tag{2.4'}$$

2.3 Application to the Model

2.3.1 Application of constraints

The model was improved by introducing the new constraints of section 2.2 into the previously discussed optimization analysis framework.

Fig. 2-2 is an example of worksheet of the improved optimization framework (model).

2.3.2 Addition to the Graphical Presentation System

A function for the output of ρ_{dmax} , ρ_b or ρ_{dmin} , and ρ_{dreg} was added to the graphical presentation system, where ρ_{dreg} is defined as dry density ρ_d identified by multivariate regression equation.

2.4 Result of Optimization with the Constraints

Based on the above discussions, optimization with the constraints has been performed for each case defined as Table 2-2, and the result was obtained as shown in Fig.2-3. In these calculation cases, all the constraints are not marginal (as shown in Fig.2-4, thus shadow price of each constraint is zero). Therefore, optimal content of silica sand is not changed compared to the previous case.

Table 2-2 Calculation cases for optimization

	weighting factor (or importance) for each assessment item	other conditions
reference case	equal for all items (x1)	no change from previous base case with positive weighting factor for "resistance to water" α_5 (w=10%, P=20MPa)
alternative case	<ul style="list-style-type: none"> • heat conductivity (x2) • nuclide sorption (x4) • others (x1) 	no change from the above reference case except for changing upper limit on resaturation time from 200 y to 600 y (w=10%, P=20MPa)

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N																
1	顕微材料最適化フレームの作成																													
2																														
3	1. 計算条件																													
4	<table border="0" style="width:100%"> <tr> <td style="width:50%; border: none;"></td> <td style="width:50%; border: none;">制約条件(データ変更可)</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">含水比w</td> <td style="border: none;">最小値 最大値</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">締め固め圧力P</td> <td style="border: none;">0 20</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">ケイ砂混合率α_0</td> <td style="border: none;">0 1 40</td> </tr> <tr> <td style="border: none;">2. 回帰式の係数</td> <td style="border: none;">設定値</td> </tr> <tr> <td style="border: none;"></td> <td style="border: none;">目的関数(セルの内容変更不可)</td> </tr> <tr> <td style="border: none;"></td> <td style="border: none;">初期値(データ変更可)と計算結果</td> </tr> <tr> <td style="border: none;"></td> <td style="border: none;">入力データ(データ変更可)</td> </tr> </table>															制約条件(データ変更可)	含水比w	最小値 最大値	締め固め圧力P	0 20	ケイ砂混合率 α_0	0 1 40	2. 回帰式の係数	設定値		目的関数(セルの内容変更不可)		初期値(データ変更可)と計算結果		入力データ(データ変更可)
	制約条件(データ変更可)																													
含水比w	最小値 最大値																													
締め固め圧力P	0 20																													
ケイ砂混合率 α_0	0 1 40																													
2. 回帰式の係数	設定値																													
	目的関数(セルの内容変更不可)																													
	初期値(データ変更可)と計算結果																													
	入力データ(データ変更可)																													
11	定数項	a1	a2	a3	a4	a5	a6	a7																						
12	乾燥密度 ρ_d	1.9945	0.0047	0.05802	0.002772	-0.001653	-0.001011	0.00093665	1.951652	1.951652	←グラフ表示用の ρ_d																			
13	特圧係数 σ	23.2364	-3.1826	-3.4656	-0.1273	1.9598	0.07405	-0.006794	-0.003157	2.154328705	0.21543287	0.21543287																		
14	熱伝導率 λ	-1.4126	0.003959	1.1748	0.09187	0.022	-0.47177	-0.01372	0.007941	83.8059598	83.8059598	0.084770161	0.323380904																	
15	初期締め固め圧力 P_0	-2.9549	-0.0034	6.4524	0.005937	-0.3593	0.05299	-0.002433	0.007941	0.056426364	0.056426364	0.000282132	0.00221318																	
16	水分係数係数 D	-23.9324	-0.1538	1.9291	0.008561	0.1245	-0.04281			460.9249329	460.9249329	0.076820822	0.768208222																	
17	透水係数 K	-2.9549	-0.0034	6.4524	0.005937	-0.3593	0.05299	-0.002433	0.007941	5.04144E-13	5.04144E-13	0.094958558	0.949585577																	
18	見かけの拡張係数 $H_0(D_0)$	-19.8912	-1.2052	0.006974	0.005383					0.330790388	0.330790388	0.285283845	0.863209512																	
19	見かけの拡張係数 $T_0(D_0)$	-19.8937	-1.938	0.009185	0.005737					0.330790388	0.330790388	0.285283845	0.863209512																	
20	見かけの拡張係数 $N_0(D_0)$	-22.0485	-3.3269	0.01243	0.008381					0.330790388	0.330790388	0.285283845	0.863209512																	
21	見かけの拡張係数 $M_0(D_0)$	-31.0275	-1.7938	-0.01427	0.01478					0.330790388	0.330790388	0.285283845	0.863209512																	
22	3. 初期関数の最小値, 最大値, $\omega = 10$																													
23																														
24	機械的安定性 α_1	最小値	最大値	$\omega = 10$	1	0.1					最小, 最大検索	$Wk(\omega)$	$w(\omega)$																	
25	膨張率 α_2	0	100	2	0.2					2.154328705	0.215432871																			
26	シール性 α_3	0	20	1	0.1					83.8059598	83.8059598																			
27	不透和止水性 α_4	0	1000	1	0.1	2.66091E-13	5.77299E-14					0.056426364	0.056426364																	
28	飽和止水率 α_5	0	1E-11	1	0.1					460.9249329	460.9249329																			
29	拡張吸着率 α_6	0	1	1	0.4					5.04144E-13	5.04144E-13																			
30	4. 機械的安定性																													
31	安全係数 β	1																												
32																														
33	5. 拡張吸着性																													
34	(1) 拡張共通パラメータ																													
35	評価地点の水量 $W(m^3/y)$	10000000																												
36	空隙率 ϕ (-)	0.33																												
37	筒体材料の溶解速度 $J_s(g/m^2 \cdot y)$	51.463																												
38	筒体中の重量分率 ω_i (-)	0.0012247																												
39	標準材料厚 $t(m)$	0.98																												
40	ガラス固化体1本当り面積 m^2	509090																												
41	(2) 拡張別パラメータ																													
42																														
43		$C_{i0}(g/m^2)$	$\beta_i(Ci/A)$	$\tau_i(Ci/m^2)$	$Kd_i(m^3/kg)$	$\eta_i(D/\tau)$ (単位面積)	$Da_i(ADA)$	$\eta_i(F)$ (単位面積)	$F_i(1)$ (近似)	$F_i(2)$	λ_i	T_i/Z_i	ω_i																	
44	1 Sg7	0.0632	0.05993	0.000108	0.001	6452.77778	1.90336E-10	2.497132032	0.000387056	0.000388968	1.06838E-05	6.500E+04	0.0421466																	
45	2 Zg9	0.032978	0.02586	0.00054	0.1	475	2.38809E-12	1.08525E-05	2.28699E-07	2.28475E-07	4.62098E-07	1.500E+06	0.07633168																	
46	3 Tg9	7.92E-15	0.01497	0.003981	0.001	209.5081728	4.63718E-10	2.47594E-18	1.18184E-20	1.18184E-20	3.26950E-06	2.120E+05	0.01465629																	
47	4 Pgl107	0.001381	0.005146	0.00091	0.001	5269.289299	1.90336E-10	5.41162E-07	6.51978E-07	6.51978E-07	9.3021E-08	7.000E+06	0.00408163																	
48	5 Sml20	0.033024	0.0284	0.003064	0.1	65.45185185	1.83388E-12	0.001204365	2.32388E-07	2.28999E-07	6.92147E-06	1.000E+05	0.30377797																	
49	6 Csl135	0.0009376	0.02684	0.00000189	0.1	109208.3492	2.38809E-12	0.000473762	4.41875E-09	4.32841E-09	6.68434E-06	9.000E+04	0.33819699																	
50	7 Tr230	0.0009376	1.094E-07	0.00000027	0.1	35749.14015	2.38809E-12	1.80528E-09	4.45717E-09	4.45717E-09	4.91594E-11	1.410E+10	0.00080793																	
51	8 Tr232	0.0009376	0.003632	0.00000027	0.1	4005505394	2.38809E-12	0.00247379	6.98316E-09	6.92005E-09	4.27864E-06	1.620E+05	0.23635625																	
52	9 Lg33	0.0009376	1.094E-07	0.00000027	0.1	35749.14015	2.38809E-12	1.80528E-09	4.45717E-09	4.45717E-09	4.91594E-11	1.410E+10	0.00080793																	
53	10 Lg34	0.0009376	0.003632	0.00000027	0.1	4005505394	2.38809E-12	0.00247379	6.98316E-09	6.92005E-09	4.27864E-06	1.620E+05	0.23635625																	
54	11 Lg35	0.0009376	0.00000183	0.00000054	0.1	2311851862	2.38809E-12	0.00181174	7.04313E-09	6.97164E-09	2.79495E-06	2.480E+05	0.19264621																	
55	12 Lg36	0.0009376	0.00000183	0.00000054	0.1	2311851862	2.38809E-12	0.00181174	7.04313E-09	6.97164E-09	2.79495E-06	2.480E+05	0.19264621																	
56	13 Lg38	0.0009376	3.394E-07	0.00000027	0.1	35749.14015	2.38809E-12	1.80528E-09	4.45717E-09	4.45717E-09	4.91594E-11	1.410E+10	0.00080793																	
57	14 Lg37	0.0009376	0.00000183	0.00000027	0.1	2311851862	2.38809E-12	0.00181174	7.04313E-09	6.97164E-09	2.79495E-06	2.480E+05	0.19264621																	
58	15 Pw239	0.0009376	0.02613	0.00000027	10	28133.33333	3.01417E-12	1.32042E-06	5.05319E-11	5.05264E-11	3.23010E-07	2.140E+06	0.0556822																	
59	16 Pw240	0.0009376	0.02613	0.00000027	10	2301111.111	2.39419E-14	3.11838E-07	4.60338E-12	1.38916E-13	2.84193E-05	2.439E+04	1.13513933																	
60	17 Am241	0.0009376	0.729	0.00000027	10	8444444.444	2.39419E-14	8.48821E-09	4.62264E-12	1.00518E-15	0.00010342	6.680E+03	1.18118353																	
61	18 Am243	0.01531	3.432	0.00000027	10	12711111.111	3.97388E-15	9.97344E-06	1.94118E-09	7.07841E-54	0.001513422	4.580E+02	109.892866																	
62	拡張計	0.01531	0.1995	0.00000027	10	7389388.009	3.97388E-15	6.815707037	1.97871E-09	6.01368E-19	8.71883E-05	7.950E+03	26.3769965																	
63																														
64	Kd(Mont.Cc)	2.54E-02																												
65	Kd(Quartz.Cc)	6.61E-02																												
66	Kd(Cc)	E-45E-02																												
67	Kd(Mont.Nb)	1.0E-07																												
68	Kd(Quartz.Nb)	0.0E+00																												
69	拡張計	3.95E-03																												
70	新空隙率 ϕ	0.526673698																												
71																														
72	6. 追加制約条件																													
73	ブロック成形可能条件	2																												
74																														
75	7. 現地固め可能条件																													
76	乾燥密度 ρ_{dmx}	定数項	a1	a2	a3	a4	a5	a6	a7	ρ_{dmx}																				
77		1.8384	4.23E-03	2.02E-03	-1.17E-05						2.014415																			
78																														
79	8. コロイドフィルター機能保持条件																													
80	有効粘土密度 ρ_b	1.703017869																												
81	拡張計	0.7																												

Fig.2-2 A worksheet of the improved optimization framework.

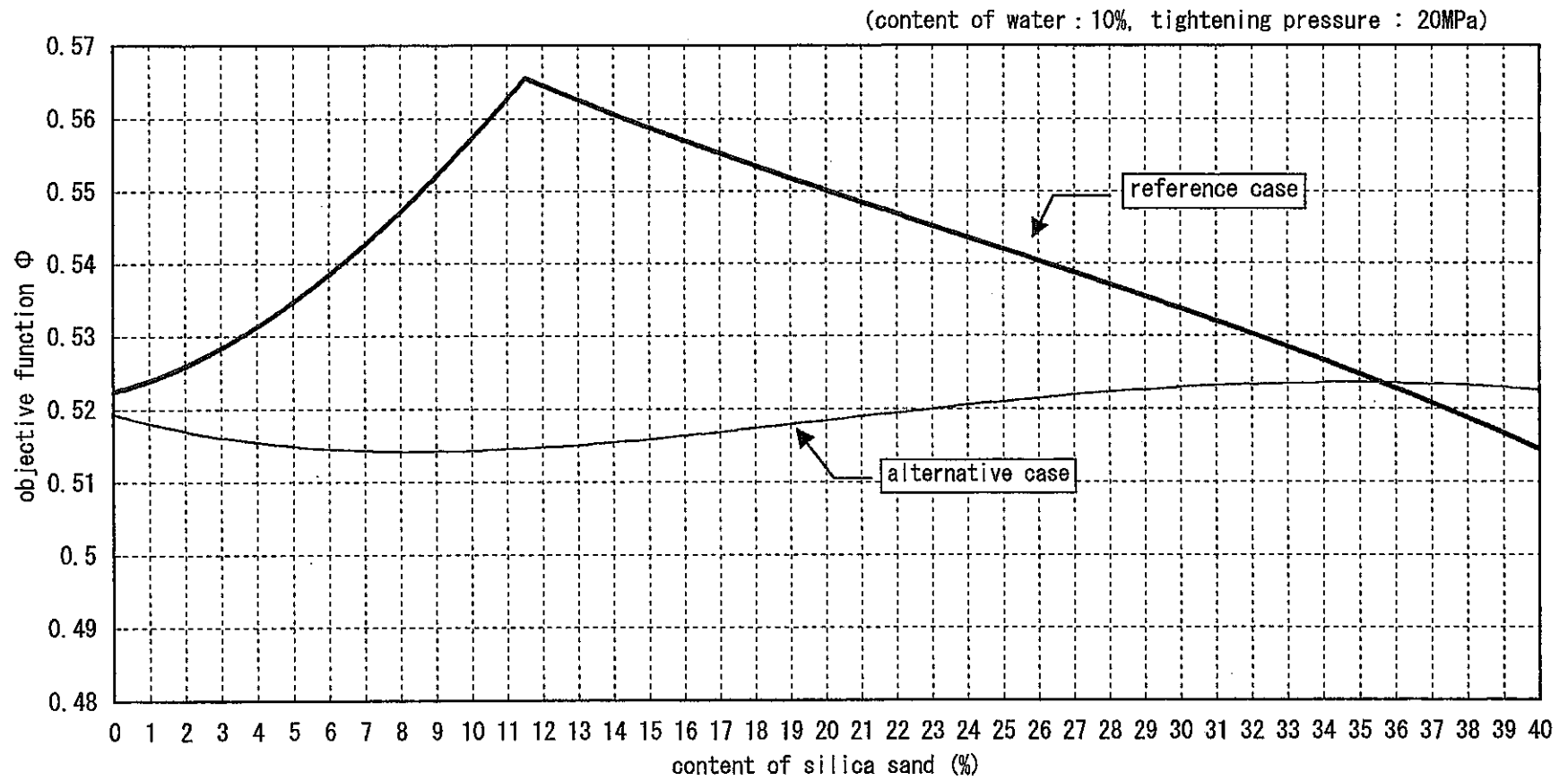


Fig.2-3 Calculation result of optimization - objective function as a function of content of silica sand -

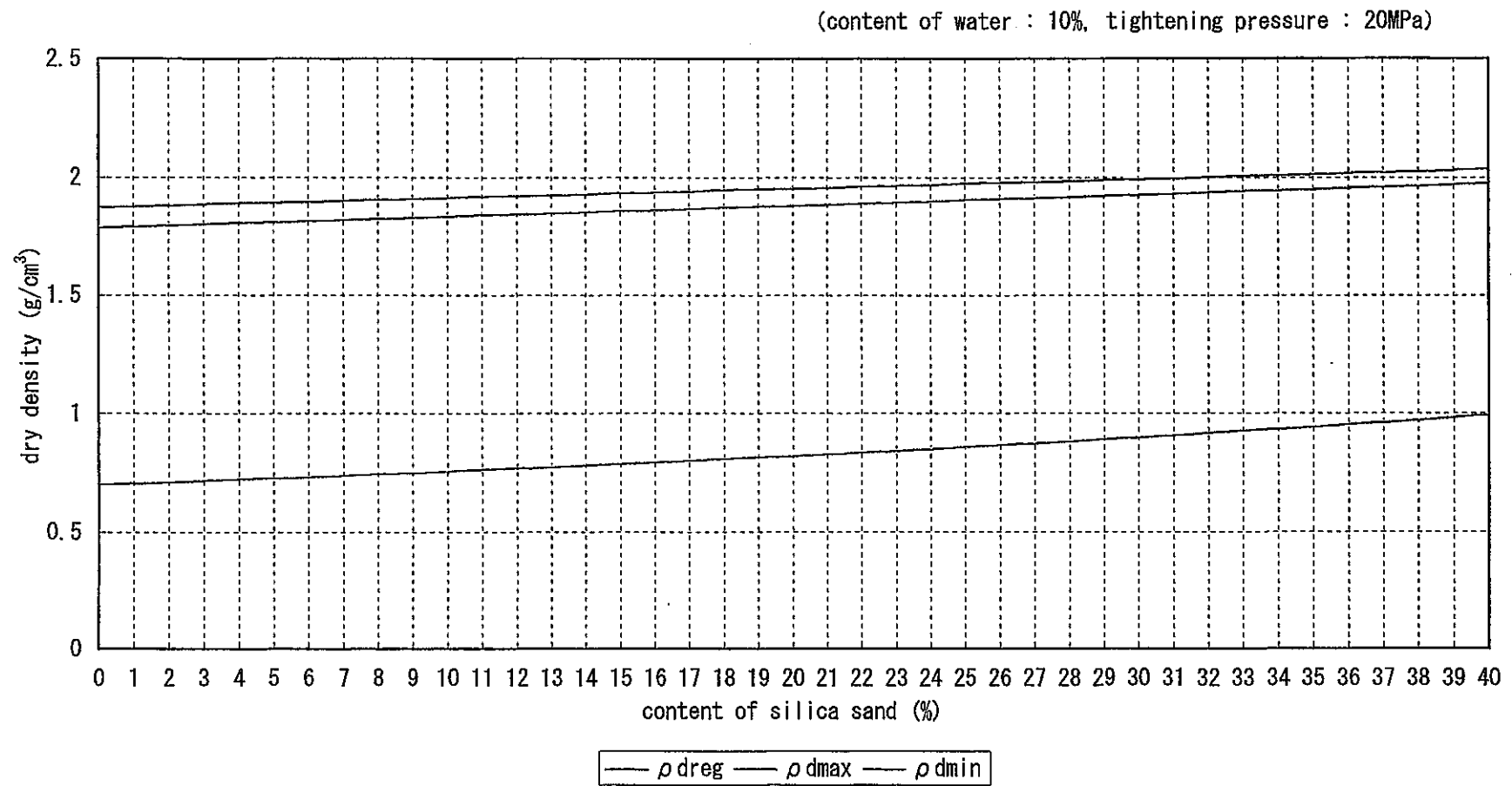


Fig.2-4 Plot of dry density and its upper / lower limits

2.5 Development of Framework for Uncertainty Analysis

The measures used in the multivariate analysis model are as follows :

- 1) one dimensional compression strength σ
- 2) heart conduction rate λ
- 3) equilibrium swelling pressure P_s
- 4) water diffusion coefficient D
- 5) hydraulic conductivity K
- 6) apparent diffusion coefficient Da (H^3 , Tc^{99} , Np^{237} , Am^{241})
- 7) dry density ρ_d
- 8) maximum dry density ρ_{dmax}

Previous years, multivariate regression equations have been developed to express each assessment index by using the above measures . This year, first, by the base line expressed by regression equation which has been already developed, each distribution data is divided into two groups : one is the upside data and the other is the downside data. Then, each data group is identified by regression analysis, respectively. Regarding the upside (downside) regression equation as reflecting the upper (lower) limit case of data distribution, objective function is set to be calculated for each case.

3. Discussion and Analysis on the Total Assessment under Uncertainty of Nuclide Sorption Data and Others

3.1 Uncertainty of Model

The conceptual models to treat the nuclide sorption are shown in previously reported Appendix A⁽⁴⁾ and also new approach is proposed by the other reference⁽⁹⁾.

This year, first, the subsequent discussion on sorption mechanism for Cs based on ion-exchange reaction theory⁽⁴⁾ was performed to make it clear how distribution coefficient could change with mixing silica sand in bentonite. Secondly, Np, a nuclide to which ion-exchange could not be applicable, was considered to explain it by using surface complexation model. The results obtained by using the related data and model presented in references^{(10)~(12)} showed that increasing content of silica sand could induce

- ① only 20% decrease in distribution coefficient for Cs (see Fig.3-1)
- ② approximately-linear decrease in distribution coefficient for Np (see Fig.3-2).

It may be pointed out that one of the next subjects is to compare (and evaluate) different conceptual model-based distribution coefficients to those obtained from experimental data analysis.

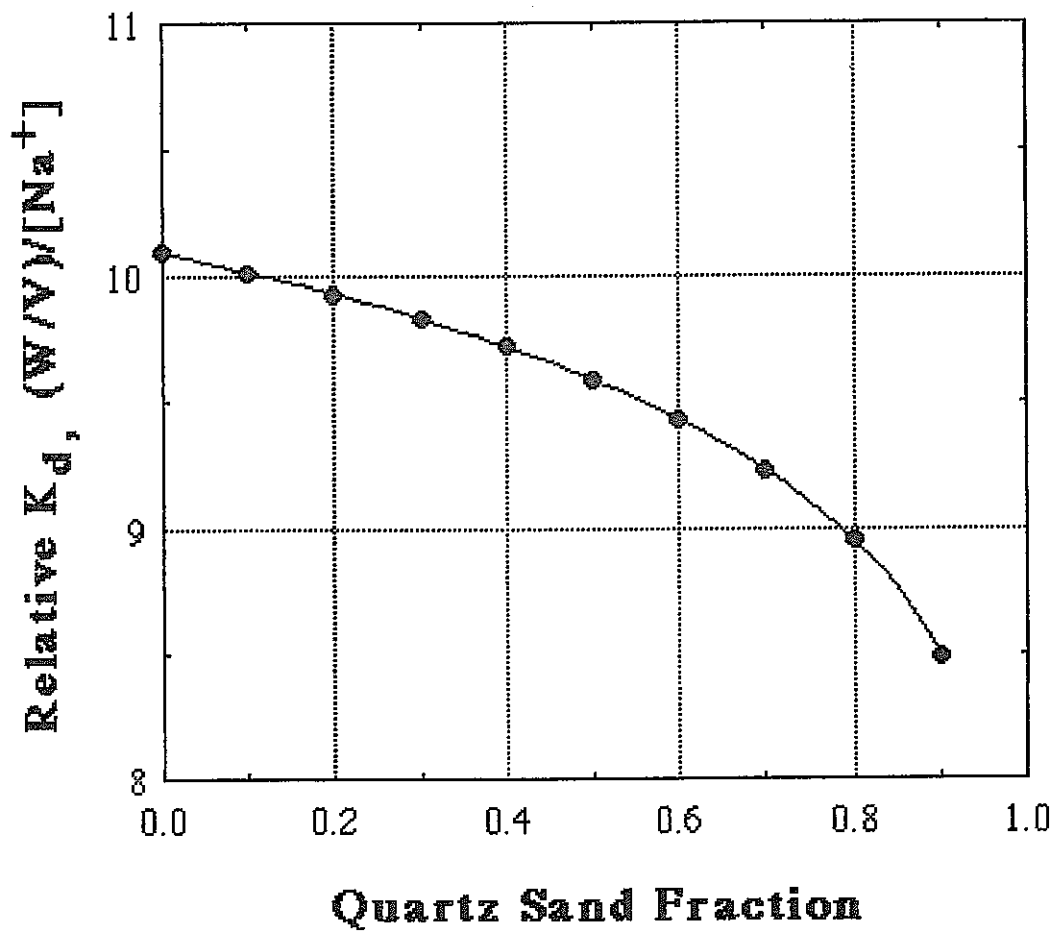


Fig.3-1 Estimated Cs distribution coefficient (relative value)
as a function of quartz sand fraction

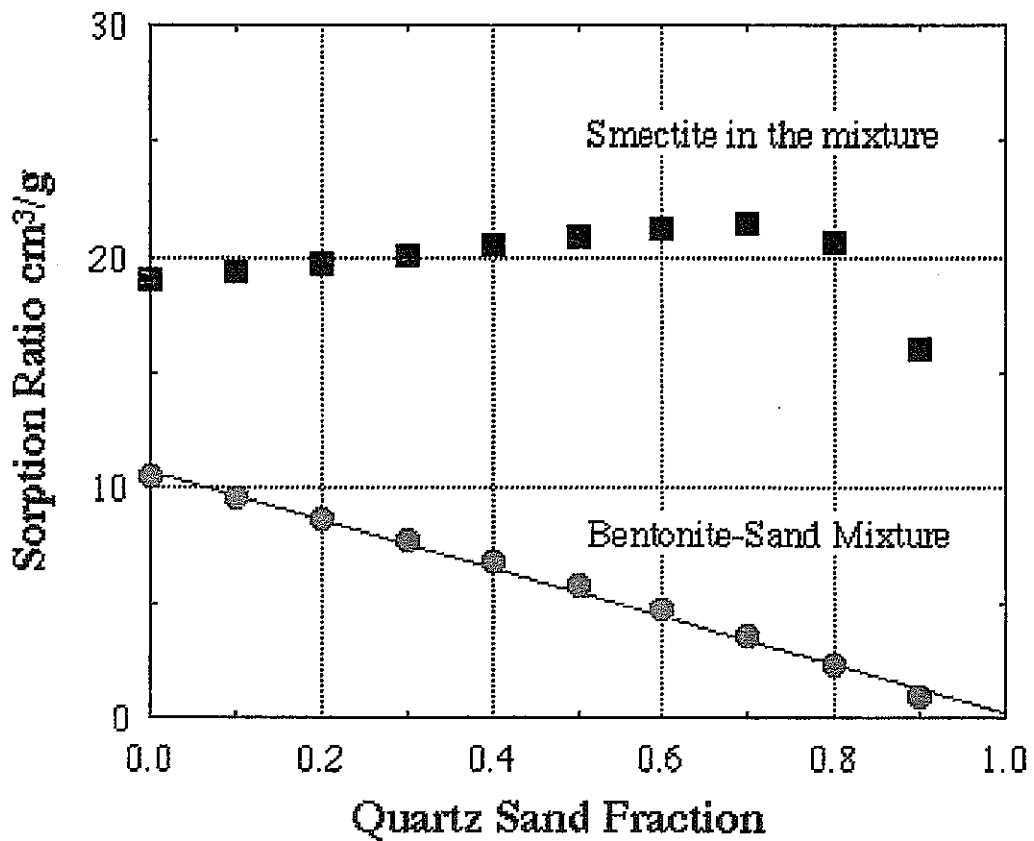


Fig.3-2 Np distribution coefficient for bentonite-sand mixture as a function of quartz sand fraction, derived by using surface complexation model

3.2 Uncertainty on Data Information

This study treated uncertainty of Cs sorption data in the constant Kd model which was the same conceptual model adopted in JNC's H12 first draft report.

3.2.1 Cs Distribution Coefficient of Each Component

Based on OECD/NEA's sorption data base SDB(Ver.2.0)⁽⁸⁾, Cs distribution coefficients of silica sand and montmorillonite were analyzed statistically to be fitted by log-normal distribution function, respectively as shown in Fig.3-3(1)(2).

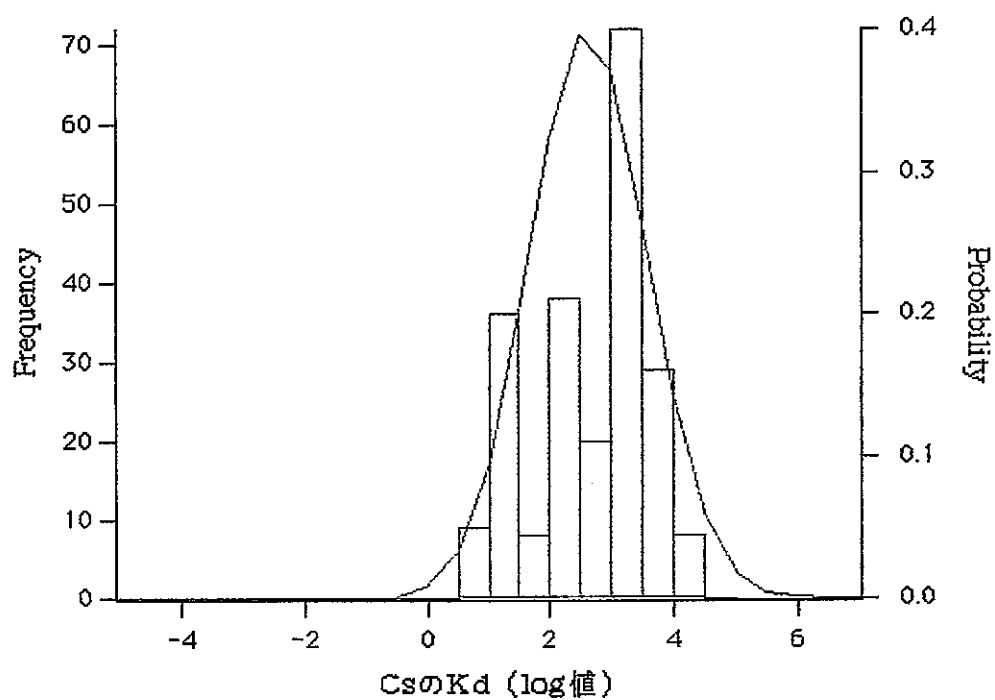


Fig.3-3(1) Frequency distribution of Cs distribution coefficient in montmorillonite fitted by log-normal distribution function

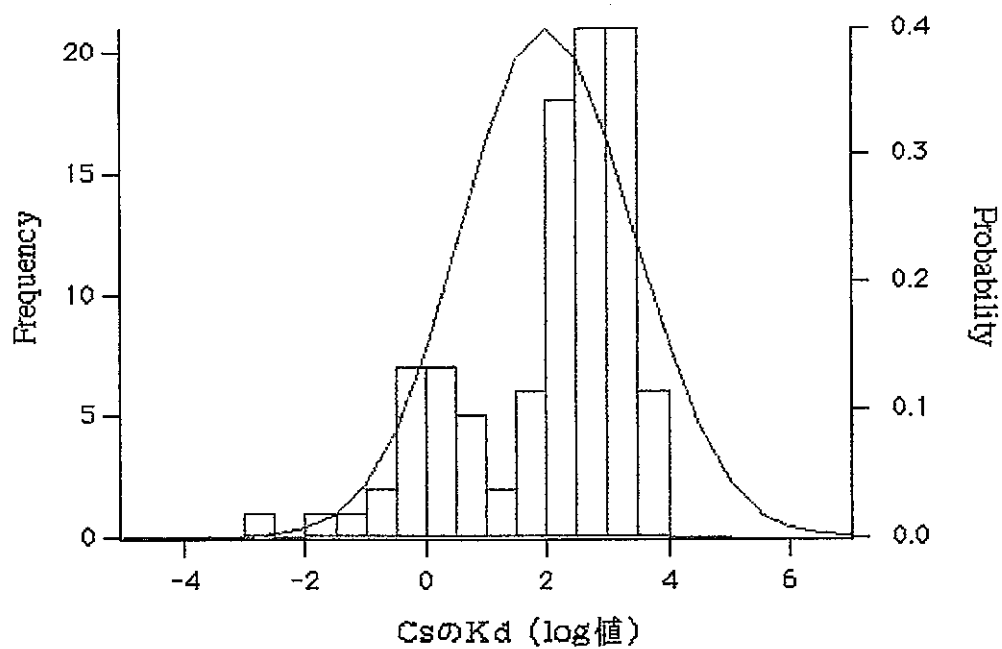


Fig.3-3(2) Frequency distribution of Cs distribution coefficient in quartz fitted by log-normal distribution function

3.2.2 Cs Distribution Coefficient of Bentonite Mixed with Silica Sand

Using the probability density functions fitted by the above log-normal distributions, maximum, minimum and mean values of Cs distribution coefficient of bentonite mixed with silica sand were simply identified. (See Fig.3-4)

3.2.3 Uncertainty Analysis on Optimal content of Silica Sand

Distribution coefficient of nuclide i on bentonite with content of silica sand R_s ($0\% \leq R_s \leq 100\%$) denoted as $K_{d,i}(R_s)$, although strictly there may be some issues as pointed out in section 1.4.1 of the previous report and linearity of $K_{d,i}(R_s)$ does not hold on relatively large R_s for some nuclide i (see Fig.3-1), can be expressed as

$$K_{d,i}(R_s) = \left(1 - \frac{R_s}{100}\right) \cdot K_{d,i}^{\text{Mont}} + \frac{R_s}{100} \cdot K_{d,i}^{\text{Quartz}} \quad (3.1)$$

where

$K_{d,i}^{\text{Mont}}$: distribution coefficient of nuclide i on pure montmorillonite (or Knipia F)

$K_{d,i}^{\text{Quartz}}$: distribution coefficient of nuclide i on quartz

if additivity holds in composition system.

Therefore, uncertainty analysis on optimal content of silica sand was performed based on the new equations (compared in Fig.3-4) for calculating apparent diffusion coefficient obtained by using K_d values from eq.(3.1) as well as the old ones based on the data from H3 report⁽⁵⁾ and JNC's experimental data⁽⁶⁾⁽⁷⁾ (see section 2.5).

As a result, according to distributed objective function Φ found in Fig.3-5 due to data uncertainty, optimal content of silica sand R_s^* was also distributed with the range of about 24% to 30% change in reference case (with $K_{d,Cs}$ this year), although if the range of K_d variation was restricted to lower region than reference case (with $K_{d,Cs}$ this year) line (colored region in Fig.3-5) it could be reduced to about 8% to 20% change in reference case (with $K_{d,Cs}$ this year) even with higher weighting factor (or importance) imposed on "nuclide sorption" because of lower K_d leading to smaller impact on dose rate.

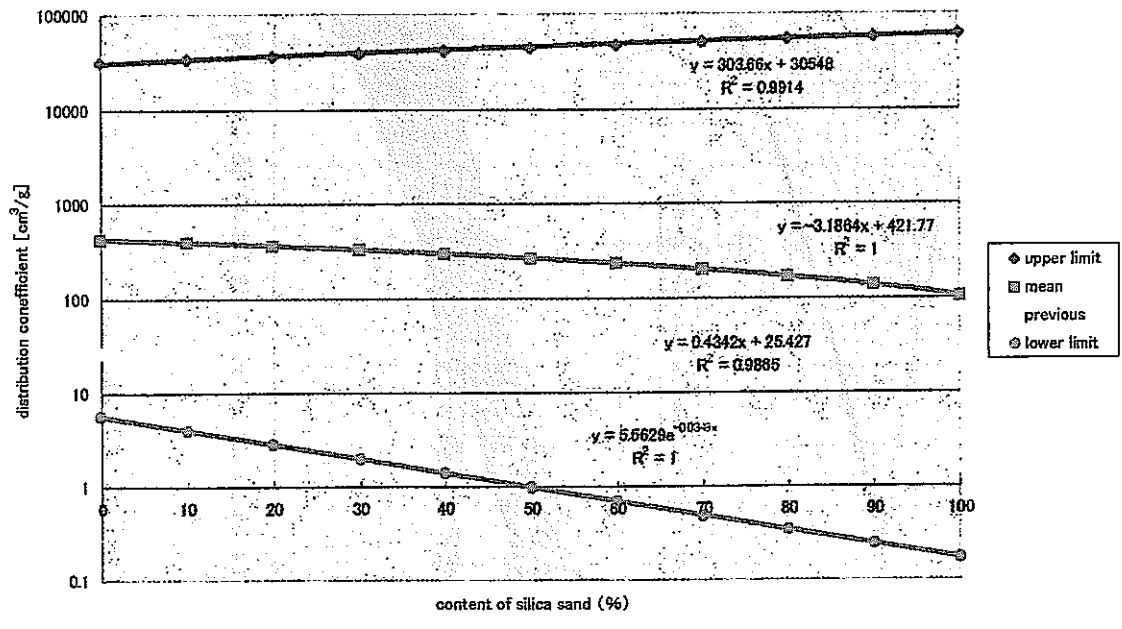


Fig.3-4 Uncertainty of Cs distribution coefficient on bentonite mixed with silica sand

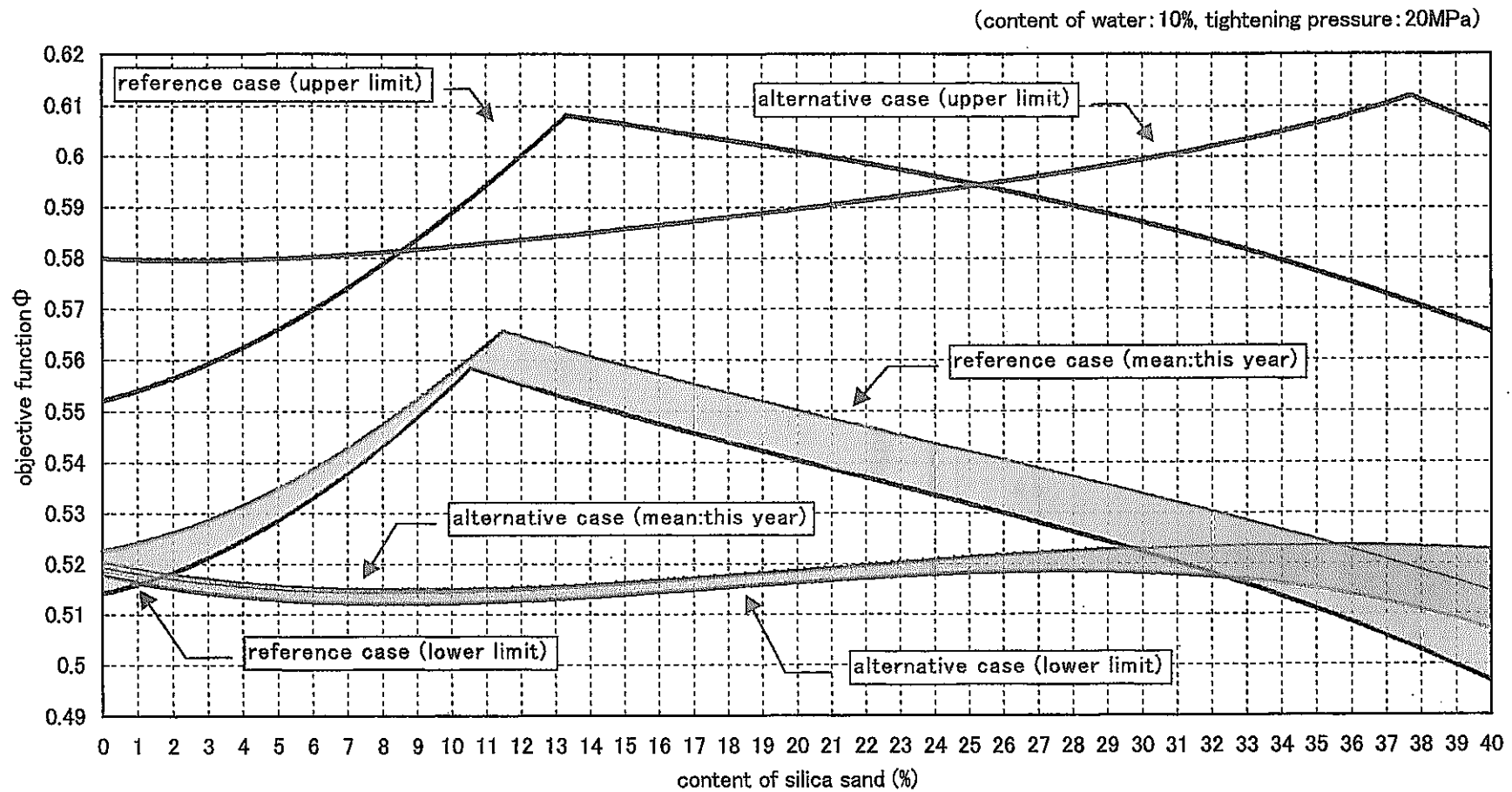


Fig.3-5 Objective function including uncertainty of Cs distribution coefficient

The game theory⁽¹³⁾ may help a decision maker find a unique optimal solution within these variations on Rs^* . This concept could be applied to our optimization problem as shown in Table 3-1.

The next step may be to generalize optimization process for solving a problem including uncertain data with a weight such as probability density function.

Table 3-1 Optimal content of silica sand based on the game theory

criterion	$Rs^*[\%]$	
	reference case	alternative case
① maximization of mean utility (Laplace criterion)	11.50 (previous year) 11.50 (this year)	34.56 (previous year) 34.44 (this year)
② maximization of minimum utility (Wald criterion)	10.56	27.67
③ maximization of maximum utility (optimistic)	13.33	37.73

3.3 Other Uncertain Factors

As one of the other uncertain factors which may cause a larger impact on optimal content of silica sand Rs^* , uncertainty of function $f(\cdot)$ defined as right-hand side of inequality (2.2) in permissible region of tightening-at site condition has been studied. This analysis showed that

- ① Rs^* may be determined by this constraint if permissible region of tightening-at site condition becomes smaller.
- ② Shadow price is a useful quantitative indicator for measuring strictness of a constraint (since its absolute value increases with increasing strictness of a constraint).

4. Concluding Remarks

This year, the discussion has been focused on the follows :

- (1) improvement and extension of the previous calculation framework (or nonlinear optimization code) to obtain the optimal content of silica sand under uncertainty of data information
- (2) uncertainty analysis on nuclide sorption data, and
- (3) analysis and evaluation of effects on optimal content of silica sand caused by uncertainty of nuclide sorption data obtained from(2), using the improved total assessment framework and solution process obtained from(1).

The next subjects to be studied will be

- (1) generalization of optimum solution process in optimization under uncertainty
- (2) case study for calculating the optimal content of silica sand under uncertainty in this improved assessment framework where more sorption data on bentonite should be required and treated theoretically for other nuclides.

References

- (1) PNC : 「The Second Report on R & D of HLW Disposal (First Draft)」 PNC TN1412 98-013(1998).
- (2) MRI : 「A Fundamental Study on Optimization for Performance of Buffer Material」 PNC ZJ1222 96-008(1996).
- (3) MRI : 「A Fundamental Study on Optimization for Performance of Buffer Material (II)」 PNC ZJ1222 97-007(1997).
- (4) MRI : 「A Fundamental Study on Optimization for Performance of Buffer Material (III)」PNC ZJ1222 98-007(1998).
- (5) PNC : 「Technical Report on the Geological Disposal of High Level Radioactive Waste -Heisei 3rd」 PNC TN 1410 92-081(1992).
- (6) H. Sato et al. : 「Effect of Dry Density on Diffusion of Some Radionuclides in Compacted Sodium Bentonite」 J. Nucl. Sci. Tech., 29(9), pp873-882(1992).
- (7) H. Sato et al. : 「Study on Retardation Mechanism of ^3H , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{237}Np and ^{241}Am in Compacted Sodium Bentonite」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.294, pp403-408(1993).
- (8) K.V.Ticknor and B.Rüegger : 「A Guide to the NEA's Sorption Data Base, Version 2.0」 OECD/NEA, September (1989).
- (9) K. Kawamura et al. : 「New Approach for Predicting the Long Term Behavior of Bentonite : The Unified Method of Molecular Dynamics and Homogenization Analysis」 Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.506, pp359-366(1998).
- (10) T.Ohe and M.Tsukamoto : 「Geochemical Properties of Bentonite Pore Water in High-Level-Waste Repository Condition」 Nucl.Technol., Vol.118, pp49-57, Apr. (1997).
- (11) T.Ohe, M.Tsukamoto, T.Fujita, R.Hesbol and H-P.Hermansson : "Temperature and pH dependence of Np(V) sorption on bentonite", 1993 International Conference on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation, Prague, pp197-205 (1993).
- (12) J.Westall : 「MICROQL II. Computation of Adsorption Equilibria in BASIC」 Swiss Federal Institute of Technology, Duebendorf, Sept. (1979).
- (13) T. Nishida : 「Theory of Game」 (in Japanese) Nikka-Giren (1973).