

本資料は 1999年 7月25日付で
登録区分変更する。 [技術展開部技術協力課]

不均質媒体中での核種移行解析 手法の高度化に関する研究 (コア研究協力)

(核燃料サイクル開発機構 研究概要)

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・転載あるいは引用する場合、特別の許可を必要としますので、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

This document is not intended for publication. No public reference nor disclosure to the third party should be made without prior written consent of Japan Nuclear Cycle Development Institute.

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

不均質媒体中での核種移行解析手法の高度化に関する研究 (コア研究協力)

大久保博生*, 中島研吾*, 松本昌昭*

要 旨

本研究では、以下の検討を行った。

- (1) 不均質媒体中での核種及び水理の移行現象を中心とした解析対象シナリオの検討
- (2) 不均質媒体中の核種移行, コロイド影響, 水理の各解析・評価手法に関する研究
- (3) (1)で抽出されたシナリオに基づき、(2)で検討された先進的な評価モデルの適用も視野に入れた包括的な性能評価スキームの検討

その結果、性能評価スキームの高度化のために今後検討すべき研究課題が明らかにされた。

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

Study on the Advanced Performance Assessment Methods Concerning Nuclide Migration through Heterogeneous Media

Hiroo Ohkubo* , Kengo Nakajima* and Masaaki Matsumoto*

Abstract

This year, three tasks have been done ;

- (1) discussion on the scenarios analyzed for nuclide migration and hydraulics in heterogeneous media
- (2) research on the methodology for analysis and evaluation of nuclide migration, colloid and hydraulics in heterogeneous media, and
- (3) discussion on the comprehensive scheme of performance assessment referring to the advanced model concepts discussed in (2), along the scenarios selected in (1).

Through these efforts, some issues for future research direction were clarified in order to advance the scheme of performance assessment.

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
2. シナリオの抽出	2-1
2章の参考文献	2-4
3. 大学での先進的評価手法の研究	3-1
3.1 MD法/均質化法	3-1
3.1.1 序	3-1
3.1.2 解析フレームの検討・開発	3-4
3.1.3 今後の展開	3-5
3.2 コロイド解析法	3-6
3.2.1 序	3-6
3.2.2 解析フレームの検討・開発	3-7
3.2.3 今後の展開	3-8
3.3 自由エネルギー最小化法	3-10
3.3.1 序	3-10
3.3.2 解析フレームの検討・開発	3-12
3.3.3 今後の展開	3-14
3章の参考文献	3-16
4. 不均質媒体系の解析フレームの検討	4-1
4.1 概 要	4-1
4.2 背 景	4-2
4.3 不均質場における実現象シミュレーション	4-4
4.4 多要素による逆ラプラス変換手法の開発	4-7
4.5 並列三次元有限要素法による広域水理解法	4-8
4章の参考文献	4-18

5. 包括的な性能評価スキームの検討	5-1
6. おわりに	6-1
謝 辞	

表 目 次

	頁
表 2-1 大学からのコメント等のまとめ.....	2-1
表 2-2 地層処分の安全性への影響が無視できるほど小さいと 判断される FEP	2-2
表 2-3 抽出したシナリオ	2-3
表 3-1 先進的な評価モデルと研究アプローチの関係	3-1

目 次

	頁
図 1-1	不均質媒体中での核種移行解析手法の高度化に関する研究の進め方 1-2
図 3-1	MD 法／均質化法の不均質場物質移動問題への適用フレーム …… 3-3
図 3-2	MO 法も含めた不均質場としてのコロイド影響解析フレーム …… 3-9
図 3-3	MD 法／均質化法と、自由エネルギー最小化法との比較 …… 3-11
図 4.1	均質場／不均質場モデルの概念図 (LLNL ParFLOW プロジェクト) …… 4-9
図 4.2	多孔質不均質場性能評価モデル (透水係数分布) と TR3D によって 算出された流線 (SGSIM アルゴリズム (Sequential Gaussian Simulation) ⁽⁴⁻²⁾ によって算出された不均質場使用) …… 4-10
図 4.3	多孔質不均質場における TR3D によって算出された流線 (SGSIM (Sequential Gaussian Simulation) ⁽⁴⁻²⁾ によって算出 された不均質場使用) …… 4-11
図 4.4	SGSIM 法 ⁽⁴⁻²⁾ によって算出された透水係数分布 (対数正規分布) … 4-12
図 4.5	PVM によって接続された PC および EWS 群 …… 4-13
図 4.6	「m-CRYSTAL」の特徴 …… 4-14
図 4.7	不均質場における流線分布 (メッシュ分割幅 = 5.00m) …… 4-15
図 4.8	不均質場における流線分布 (メッシュ分割幅 = 1.25m) …… 4-16
図 4.9	並列有限要素解法の概念図 …… 4-17
図 5-1	先進的評価モデルの適用を考慮した包括的性能評価スキーム …… 5-3
図 5-2	均質化法やコンパートメント化法をベースとする場合の 統合化フレーム …… 5-4

1. はじめに

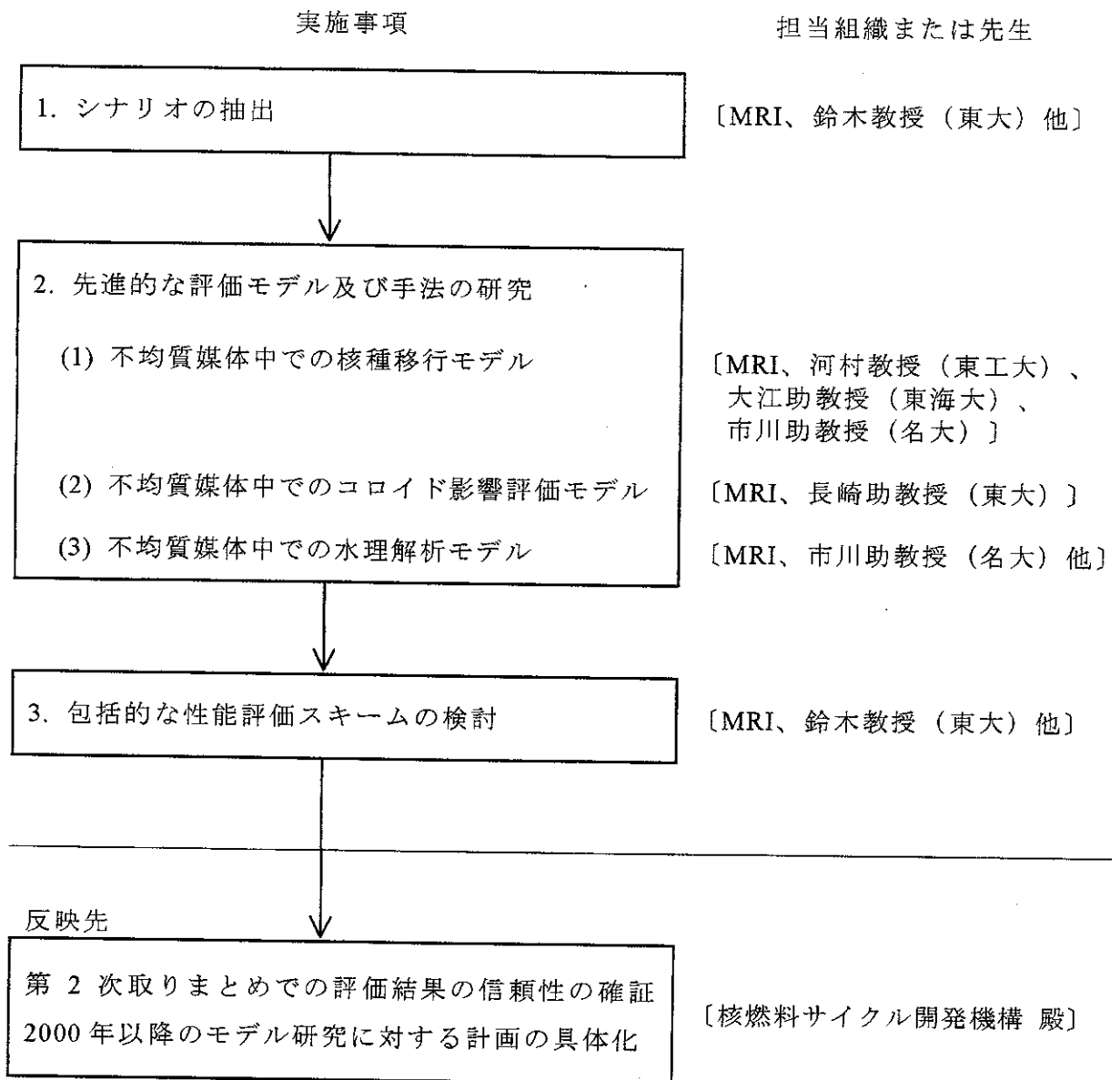
核燃料サイクル開発機構殿では、高レベル放射性廃棄物の地層処分の研究開発に係わる中核機関として、2000年までに自主及び他の国内外の研究機関の研究成果を集約して評価を行う「第2次取りまとめ」を行っている。この第2次取りまとめでは、地層処分の技術的信頼性を示すとともに、2000年以降実施される処分予定地の選定ならびに安全基準の策定に対する技術的拠り所を与えることが求められており、報告書についても公表・公開される計画である。

第2次取りまとめにおける安全評価（性能評価）に用いている核種の熱力学データや分配係数等の基礎的な物性値については、核燃料サイクル開発機構殿のデータ取得・評価方法や値について国内外の専門家によるレビューを受けること、また OECD/NEA（経済協力開発機構/原子力機関）によって国際的に構築されているデータベースを利用すること等により、データの品質及び信頼性についてコンセンサスが得られつつある。

一方、評価モデルについては、現在のところ一般的に幅広く認知されている経験則や現象論に基づくマクロ的な評価モデルが採用されているが、今後は現象の詳細な理解や普遍的な理論に基づく評価モデルの方向に高度化を図り、安全評価の信頼性を一層向上していくことが必要である。

本研究では不均質媒体中での核種移行及び水理解析モデルについて、ミクロ及びマクロの双方の観点から先進的な評価モデルを検討し、既存の評価モデルに対する不確実性の検討に資するとともに、将来的なモデル研究の方向性及び見通しを明らかにし、評価スキームの高度化を図る。

なお、本研究は、コア研究協力の一環として、図 1-1 に示すように各大学の協力のもとに進めた。



注) MRI : 三菱総研

図 1-1 不均質媒体中での核種移行解析手法の高度化に関する研究の進め方

2. シナリオの抽出

本研究を遂行するにあたり、まず、JNC 殿の第 2 次取りまとめ 第 1 ドラフト⁽²⁻¹⁾の内容に関し、大学の諸先生方からコメント等をいただいた。

JNC 殿と大学の諸先生方との意見交換の結果(表 2-1 参照)並びに JNC 殿の FEP リスト(表 2-2)を参考に、不均質媒体中での核種及び水理の移行現象を中心とした解析対象シナリオを抽出した(表 2-3 参照)。これらの変化は、起因となり得る天然現象の経時的空間的変化特性に基づき、一般には時間と空間の双方に関して変動し得ると考えられる。

表 2-1 大学からのコメント等のまとめ

- ① 本来、安全評価では、予測的意味合いは低い。
- ② FEP の選定やレファレンスケースの設定には、必要以上にバイアスがかかっていないことが重要であると同時に、もともと不必要なものまで敢えて加えておくのも問題である。
- ③ レファレンスケースと同じ土壌にないモデルと比較すべきケースもあり得る。
- ④ 確率的アプローチは、それが保守側に作用する場合には有効と考えられる。
- ⑤ レファレンスケースを基準に不確実性を評価する場合、レファレンスケースに保守的な値を明瞭に用いる必要がある。
- ⑥ 簡易化されたモデルでは、往々にして過大評価となりがちである。
- ⑦ 使用データの性質・意味合いや結果の不確実性幅の解釈は、明確化できるようにしておくべきである。
- ⑧ OECD/NEA⁽²⁻²⁾に指摘される 3 つの不確実性の源「シナリオ」「モデル計算」「パラメータ/データ」のうち、最も大きく効くのは「シナリオ」の幅ではないか？
- ⑨ 結果への裕度という観点からは、生物圏評価結果や線量換算データ等の設定にも留意する必要がある。

表 2-2 地層処分の安全性への影響が無視できるほど小さいと判断される FEP

	G. ガラス固化体とその近傍	OP. オーバーバック（腐食生成物含む）	B. 緩衝材	D. ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材	H. 母岩（掘削影響領域、断層破砕帯含む）
1. 熱的現象・特性	G-1.1 ガラス固化体の熱物性 G-1.2 ガラス固化体の温度 G-1.3 ガラス固化体の熱膨張 G-1.4 崩壊熱の発生	OP-1.1 オーバーバックの熱物性 OP-1.2 オーバーバックの温度 OP-1.3 オーバーバックの熱膨張	B-1.1 緩衝材の熱物性 B-1.2 緩衝材の温度 B-1.3 緩衝材の熱膨張	D-1.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の熱物性 D-1.2 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の温度 D-1.3 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の熱膨張	H-1.1 母岩の熱物性 H-1.2 母岩の温度 H-1.3 母岩の熱膨張
2. 水理学的現象・特性			B-2.1 緩衝材の水理特性 B-2.2 緩衝材の飽和 B-2.3 緩衝材中での地下水流動	D-2.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の水理特性 D-2.2 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の飽和 D-2.3 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材中での地下水流動	H-2.1 母岩の水理特性 H-2.2 母岩の飽和 H-2.3 母岩中での地下水流動
3. 力学的現象・特性	G-3.1 ガラス固化体の力学特性 G-3.2 ガラス固化体の応力 G-3.3 ガラス固化体の割れ	OP-3.1 オーバーバックの力学特性 OP-3.2 オーバーバックの応力 OP-3.3 オーバーバックの圧縮 OP-3.4 オーバーバックの腐食膨張 OP-3.5 オーバーバックの沈下	B-3.1 緩衝材の力学特性 B-3.2 緩衝材の応力 B-3.3 緩衝材の基酒 B-3.4 緩衝材のクリープ B-3.5 緩衝材の流出	D-3.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の力学特性 D-3.2 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の応力 D-3.3 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の基酒 D-3.4 ブラッグ、支保、埋め戻し材のクリープ D-3.5 ブラッグ/グラウト、埋め戻し材の流出	H-3.1 母岩の力学特性 H-3.2 母岩の応力 H-3.3 母岩のクリープ
4. 化学的現象・特性	G-4.1 ガラス固化体の化学特性 G-4.2 ガラス固化体周囲の地下水化学 G-4.3 ガラス固化体の溶解 G-4.4 ガスの発生/影響 G-4.5 微生物の影響 G-4.6 有機物の影響 G-4.7 コロイドの形成 G-4.8 ガラス固化体の化学的変質	OP-4.1 オーバーバック中の化学特性 OP-4.2 オーバーバック中の地下水化学 OP-4.3 オーバーバックと地下水の反応 OP-4.4 オーバーバックの腐食 OP-4.4.1 全面腐食 OP-4.4.2 孔食 OP-4.4.3 すきま腐食 OP-4.4.4 応力腐食割れ OP-4.5 腐食生成物の生成 OP-4.6 ガスの発生/影響 OP-4.7 微生物の影響 OP-4.8 有機物の影響 OP-4.8 コロイドの形成	B-4.1 緩衝材の化学特性 B-4.2 緩衝材中の地下水化学 B-4.3 緩衝材と地下水の反応 B-4.4 ガスの発生/影響 B-4.5 微生物の影響 B-4.6 有機物の影響 B-4.7 コロイドの形成 B-4.8 緩衝材の化学的変質 B-4.9 塩の蓄積	D-4.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の化学特性 D-4.2 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材中の地下水化学 D-4.3 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材中と地下水の反応 D-4.4 ガスの発生/影響 D-4.5 微生物の影響 D-4.6 有機物の影響 D-4.7 コロイドの形成 D-4.8 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の化学的変質	H-4.1 母岩の化学特性 H-4.2 母岩中の地下水化学 H-4.3 母岩と地下水の反応 H-4.4 ガスの発生/影響 H-4.5 微生物の影響 H-4.6 有機物の影響 H-4.7 コロイドの形成 H-4.8 母岩の化学的変質
5. 放射線学的現象・特性	G-5.1 ガラス固化体中での核種の放射性崩壊 G-5.2 ガラス固化体周囲の浸透水の放射線分解 G-5.3 ガラス固化体の放射線損傷	OP-5.1 腐食生成物中での核種の放射性崩壊 OP-5.2 腐食生成物中の浸透水の放射線分解 OP-5.3 腐食生成物の放射線損傷	B-5.1 緩衝材中での核種の放射性崩壊 B-5.2 緩衝材中の浸透水の放射線分解 B-5.3 緩衝材の放射線損傷	D-5.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材中での核種の放射性崩壊 D-5.2 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材中の地下水の放射線分解 D-5.3 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の放射線損傷	H-5.1 母岩中での核種の放射性崩壊 H-5.2 母岩中の浸透水の放射線分解 H-5.3 母岩の放射線損傷
6. 物質（核種）移動現象・特性	G-6.1 ガラス固化体周辺の物質移動特性 G-6.2 間隙構造 G-6.3 ガラス固化体からの核種の溶出 G-6.3.1 核種のコングルエントな溶出 G-6.3.2 沈澱/溶解	OP-6.1 腐食生成物の物質移動特性 OP-6.2 間隙構造 OP-6.3 腐食生成物中の核種の移行 OP-6.3.1 移行/分散 OP-6.3.2 拡散 OP-6.3.3 収着 OP-6.3.4 沈澱/溶解 OP-6.3.5 コロイドによる移行 OP-6.3.6 ガスによる移行	B-6.1 緩衝材の物質移動特性 B-6.2 間隙構造 B-6.3 緩衝材中の核種の移行 B-6.3.1 移行/分散 B-6.3.2 拡散 B-6.3.3 収着 B-6.3.4 沈澱/溶解 B-6.3.5 コロイドによる移行 B-6.3.6 ガスによる移行	D-6.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の物質移動特性 D-6.2 間隙構造 D-6.3 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材中の核種の移行 D-6.3.1 移行/分散 D-6.3.2 拡散 D-6.3.3 収着 D-6.3.4 沈澱/溶解 D-6.3.5 コロイドによる移行 D-6.3.6 ガスによる移行	H-6.1 母岩の物質移動特性 H-6.2 間隙/亀裂の構造 H-6.3 母岩中の移行/分散 H-6.3.1 移行/分散 H-6.3.2 拡散 H-6.3.3 収着 H-6.3.4 沈澱/溶解 H-6.3.5 コロイドによる移行 H-6.3.6 ガスによる移行 H-6.4 臨界
7. システムの擾乱となり得る現象	G-7.1 ガラス固化体の組成不良	OP-7.1 オーバーバックの製作不良	B-7.1 緩衝材の製作不良 B-7.2 緩衝材の施工不良	D-7.1 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の製作不良 D-7.2 ブラッグ/グラウト、支保、埋め戻し材の施工不良	H-7.1 ボーリング孔、トンネルのシール不良/変質
天然現象（地震・断層活動、隆起・侵食活動、火山・火成活動、気候・海水準変動、卵石の落下、洪水）					
人間活動（探査、採掘、地下空間利用、土木工事、化学的汚染、核兵器の使用）					

表 2-3 抽出したシナリオ

	シナリオ	主として 関連する FEP No.
①	地震・断層等による亀裂数増加／水理学的破砕形成と、これらを経由した核種移行の経路変更	H-2.1 H-2.3 H-6.1 H-6.2 H-6.3
②	隆起・侵食率の局所的変化による動水勾配の空間的变化と、これに伴う核種移行速度の変化	H-2.1 H-2.3 H-6.1 H-6.2 H-6.3
③	隆起・侵食に伴う地表の酸化性地下水との混合と、これに伴う核種収着あるいは溶解度の変化	H-4.2 H-6.3
④	火成活動による温度上昇でのスメクタイト粘土のイライト化と、これに伴う核種収着の変化	B-4.8 B-6.3

2 章 の 参 考 文 献

- (2-1) 動力炉・核燃料開発事業団：「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).
- (2-2) OECD/NEA：「Uncertainty Analysis for Performance Assessments of Radioactive Waste Disposal Systems」 Proceedings of an NEA Workshop, Paris (1987).

3. 大学での先進的評価手法の研究

1章にも述べているように、本研究は、JNC 殿の意向に基づき、他の研究機関との研究協力を通じて、不均質媒体中での核種移行解析手法を高度化することを目指すものである。

そこで、MRI が過去の研究協力を受けてきた大学の諸先生方及び今回 JNC 殿から新たに御紹介いただいた大学の諸先生方からなる研究体制が図 1-1 のように構成された。具体的には、表 3-1 に示す先進的評価モデルあるいはアプローチ方式についての研究協力をけることとなった。

表 3-1 先進的な評価モデルと研究アプローチの関係

研究対象系	不均質媒体中での核種移行モデル		不均質媒体中でのコロイド影響評価モデル		不均質媒体中での水理解析モデル
アプローチ方法	(a)分子動力学法による移行モデル	(b)自由エネルギー最小化法による移行モデル	(a)分子軌道法による解析モデル	(b)マクロ的な視点による解析モデル	(a)流線による解析モデル
ミクロ的な視点によるモデル化	MD 法		MD/MO 法		
マクロ的な観点によるモデル化		自由エネルギー最小化法		コロイド解析方法の検討	既存解析コードの改良
物質移動方程式への組み込み方法	均質化法				均質化法

注) MD 法：分子動力学法

MO 法：分子軌道法

3.1 MD 法／均質化法

3.1.1 序

量子力学や分子シミュレーションを用いた物質研究の方法は、主として分子内の化学結合を調べるための分子軌道法 (MO) や、分子動力学法 (MD)、メトロポリスのモンテカルロ法 (MC) 及び、分子力学法 (MM) など、多様化して

おり、特に、MD, MC, MM の各手法を用いると、構造や物性の予測まで直ちに到達できる可能性がある⁽³⁻¹⁾。

また、放射性廃棄物の分野で MO 法を用いた研究事例もある⁽³⁻²⁾。さらに、MO 法の解析結果から、JNC 殿が検討されているマクロ系の核種移行解析フレームへのリンクの仕方（例えば、粘土鉱物への水分子の吸着力や、化学結合エネルギー $\Delta G_{\text{chem}}^{\circ}$ の推測）についての課題も指摘されている⁽³⁻³⁾⁽³⁻⁴⁾。これに対し、MD 法では、拡散、粘性などの動的性質を表す諸量（EX.自己拡散係数）が Einstein の式等を用いて求められる⁽³⁻⁵⁾。

均質化法（マクロ量からの一階のズレ量を摂動法的に導く方法）^{(3-6)~(3-9)}では、運動方程式や熱伝導方程式などのような不均質（離散的集合要素）体系でのマクロな基礎方程式が与えられ、かつマイクロ体系から求められる諸量（Ex.鉱物表面あるいは鉱物間の水の物性）を周期的境界条件として適切に設定できる問題ならば、応用範囲が広いと考えられる。

均質化法の適用のしかたを解析対象の種類といった観点から見ると、主として

- (1) マクロ方程式系の状態量自身を求めるケース
- (2) マクロ方程式系に含まれるパラメータを観測データ等より逆問題的に求めるケース
- (3) ミクロ体系から求められる諸量に基づいたマクロ体系の法則などの導出

に分けられる（図 3-1 参照）。

最も理想的には、熱学－水理学－力学－化学－核種移行の連成方程式をマクロ体系とする不均質場に対して、均質化理論を適用することと考えられよう。

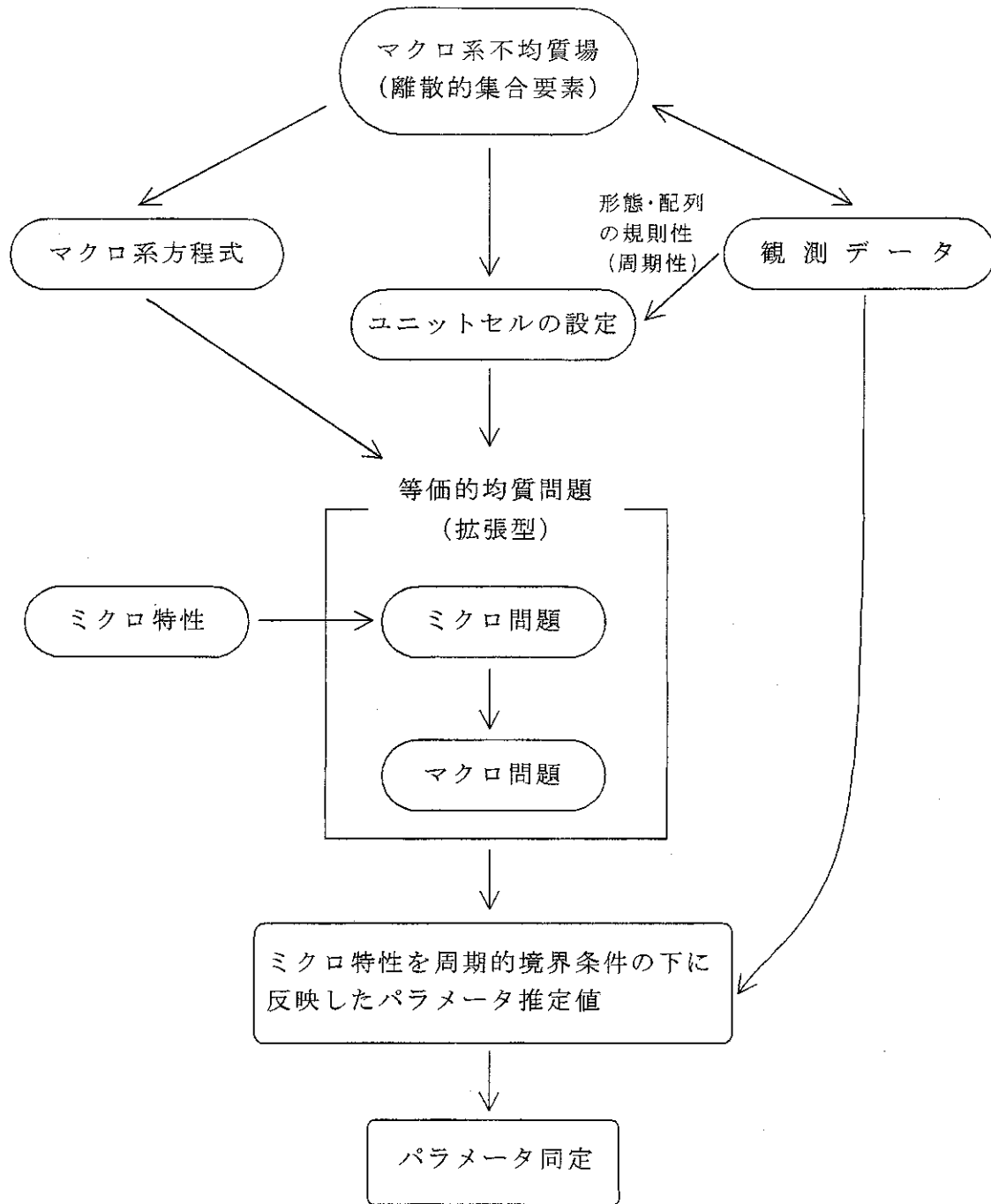


図 3-1 MD 法／均質化法の不均質場物質移動問題への適用フレーム

しかし、このようなマイクロ解析手法を用いた計算機シミュレーションにも、主として計算機能力等に起因した欠点も指摘されている⁽³⁻¹⁰⁾。そこで、マイクロ解析結果をマクロ系にリンクしようとする試みが、均質化法との結合シミュレーション手法である。

最近、後者のアプローチ法の一環として、MD法と均質化法とを結合した統合的解析フレームが提案されている⁽³⁻¹¹⁾⁽³⁻¹²⁾。

3.1.2 解析フレームの検討・開発

以上より、MD法/均質化法の結合解析フレームとして、緩衝材の拡散・吸着問題及び透水場解析へ適用可能とするモデルが検討・開発された。

(1) モンモリロナイト水和物あるいは粘土鉱物-水境界に分子動力学を適用して粘土鉱物ならびに周辺の水の物性を求めた。その結果、以下の結論を得た。

① 粘土鉱物（バイデライト）の膨潤挙動が分子動力学計算で精度良く再現された（実験結果と一致）。また層間水の構造と膨潤性の関連がより明確となった。

② 粘土分子表面近傍では表面電荷の影響により水分子は構造化され（氷床構造）、水分子の拡散係数が小さくなり、それに反比例して粘性係数が大きくなる。

(2) 分子動力学計算で求められた水の粘性分布を使ってモンモリロナイト積層体が無数に存在するようなベントナイトの透水場を求めた。

多くの実験を総合した純粋の粘土鉱物からなる各種粘土の透水特性が計算した値と極めて良く一致し、計算で求められた値が従来の経験に照らし合わせても妥当であることが証明された。

(3) 緩衝材中における物質拡散とそれに伴う物理化学的特性や力学特性の変化を評価するために、分子シミュレーション法の一つである分子動力学法（MD）と均質化法（HA）を融合した新しい結合解析法の適用性について検討し、特に塩水環境下で重要な役割を果たす塩素イオンと、セメントの存在下で重要であるカルシウムイオンについて、結合解析法を適用して物質拡散評価モデル（不均質場における非定常拡散や吸着の問題を解析するための評価フレーム）が構築された。

3.1.3 今後の展開

ここでは、MD 法と均質化法とを融合したマイクロ／マクロ結合解析フレームについての検討結果を示した。具体的には、JNC 殿の核種移行モデルに含まれる拡散係数 D 、透水係数 K 、分配係数 K_d に概念的には対応する諸量又は数式を同時に含む不均質媒体系解析モデルが開発された。

このモデルの応用範囲は、本節の始めに述べているように、潜在的にはかなり広いものと期待し得る。もちろん、核種移行媒体が地下水だけではなくガスあるいはコロイドでも、基本的には適用可能であろう。特に本モデルの特徴が生かされる応用ケースは、2 章で示した JNC 殿の FEP リスト（熱－化学－水理－力学＋核種移行）との係わりで示すと、

- ・ 緩衝材や母岩の変質・変形（不均質媒体系解析）
- ・ 不純物混入（品質管理）
- ・ 亀裂、欠陥の進展（劣化診断）

などであろう。

さらに本モデルの適用分野を拡大する上では、以下のような展開が考えられる。

- ・ 周期的境界条件から、より現実に近い（例えば、ランダムな）境界条件への拡張
- ・ 最小単位（ユニット）レベルの多段化（つまり、マイクロとマクロといった 2 段階ではなく、マイクロ－マイクロ－マクロといった 3 段階でとらえたりして、その複数の段階レベルを、例えばフラクタルの相似則を用いて表現する、など）
- ・ 時間的摂動項（例えば、“ゆらぎ”のような概念）の導入による時空間摂動の重畳効果の定量化（一種の安定性解析）
- ・ 感度解析の効率化への応用

また、本モデルは、マクロ系の方程式（核種移行モデル）から出発して、マイクロ系への座標変換を通じて、マクロ変数のズレ量（第一又は第二摂動項）を求め

るフレームとなっているが、発想を逆にして、もし、既知の核種移行モデルの成り立つ領域が、ある微小なコンパートメントであるとして、これを拡大して大きなコンパートメント系に変換することによって、もし可能ならば、より広域の不均質場解析モデルを導くことができないだろうか？2章で述べているような、JNC 殿が生態圏評価に用いているコンパートメントモデル、あるいは地質圏での不均質場に適用されるコンパートメントモデル（3.3 節参照）とのアナロジーを研究することが可能になるだろう。

ただ、ミクロな方向に詳細化するだけでは、当然のことながら、計算時間が多大化するため、これらの研究の進展性が、計算機技術の画期的進歩に強く依存してしまうことも否めない。求解アルゴリズム体系自体を改善してより効率的におかつ十分な精度の解が得られることが肝要と考えられる。

3.2 コロイド解析法

3.2.1 序

放射性核種のコロイド移行については、ガス移行とともに、無視し得るほどの小さいものとして JNC 殿の FEP リストからは除外対象となっている（表 2-2）。しかし、3.3 節でもガス移行を念頭に検討を進めたように、ここでも先進的評価研究の一環として検討対象としてとりあげた。

コロイド移行に関するアプローチ法を、後述の図 3-3 に示される 2 つの流れに分けて考えることも可能であろう。

これまで、界面とか境界層とかいった異なった 2 つの相が互いに接している不均一系に対する計算機シミュレーションはほとんど行われていなかった。これは、計算機中で取り扱える分子の数がまったく限られたものでしかなく、むしろ計算機シミュレーションの不得意とする分野であったためである。しかしながら、これらは触媒反応、電極反応、結晶成長、また膜やコロイド生成などにおいてとくに重要であり、80 年代中頃より活発な研究がなされるようになってきた⁽³⁻¹⁰⁾。例えば、地下水コロイドの代表的なものであるシリカ微粒子の挙動を把握する上で、アモルファスシリカの構造推定に MOPAC が有効な手法となる可能性のあることが指摘されている⁽³⁻¹³⁾。

3.2.2 解析フレームの検討・開発

そこで、本研究では、まず、地層中におけるイオン-コロイド-固相の3相系における核種移行の定式化を行い、コロイド形成が核種移行に及ぼす影響を評価した。その結果、以下のことがわかった。

- ・ 形成された擬似コロイドは、Hydration Chromatography 効果による移行の促進と、Filtration 効果による移行の抑制を受けつつ地層中を移行する。Filtration 効果が大きいときにはイオンの移行よりも遅延されるが、Filtration 効果が小さいと移行が促進される可能性がある。
- ・ 擬似コロイド移行に影響を及ぼす主要なパラメータは、どれだけ擬似コロイド化するかを表すコロイド粒子への吸着分配係数と、形成された擬似コロイドがどれだけ Filtration されるかを表す Filtration 係数である。
- ・ 本解析で考慮した Hydration Chromatography 効果による移行の促進と Filtration 効果による移行の抑制は、室内でのカラム実験でも確認された。

そこで次に、擬似コロイド形成挙動の理解と予測に分子軌道法が有効であるかどうかを検討することとした。

分子軌道法には、Gaussian 94 *ab initio* 計算コードを用いた。また地下水コロイドとして、 Fe_3O_4 (マグネタイト) を、吸着イオンとして $\text{Ni}(\text{OH})_2$ (ニッケル) を取り上げた。

その結果、結合するために $\text{Ni}(\text{OH})_2$ がマグネタイト表面に2個の水素結合を形成するように接近し、水素結合を形成して安定化されること、また最終的にはNiと表面酸素原子との間にイオン結合に近い強い結合を形成してより安定に吸着する可能性があることを示した。

このようにイオンの吸着、さらには擬似コロイド形成とその安定化の評価に分子軌道法が有効であることがわかった。

今後は、PZC 付近あるいは酸性領域での吸着、さらには表面欠陥などの影響を取り込み、実験結果と比較しより詳細に擬似コロイド形成メカニズムを解明することが期待される。

3.2.3 今後の展開

ここでは、核種のコロイド移行に関する解析モデルとして、マイクロ／マクロの双方からのアプローチ手法についての検討が行われた。コロイド状態が核種移行に与える影響の解析は、本来、マクロ的アプローチが直接的と考えられる。しかし、コロイドとしての物理化学的性質や構造を MO 法や MD 法といったマイクロ解析手法により明確化しておくことは、母岩中コロイド移行や緩衝材中コロイドフィルトレーション効果の不確実性要素を排除する上で有用な情報を与えると考えられる。

従って、JNC 殿の FEP リスト上では無視し得るものではあっても、長期的将来において何がしかの不測の状態が生ずる可能性も配慮すればシナリオ解析における不確実性幅の低減化あるいは人工バリアの設計にも寄与し得る結果を与えるものと考えられる。

コロイドの状態遷移を扱う核種移行モデルでは、それを考慮しない JNC 殿の核種移行モデルよりも導入される変数の種類が増え、このため、解析に必要な諸情報も多くなると考えられる。このため、実験学的考察と理論的考察の双方向からの研究が有効な成果を導くものと考えられる。従って、本解析フレームは、主に FEP リスト中のコロイド関連のものが係わるが、その条件を左右する熱－水理－化学状態と核種移行に関与するパラメータ・事象も同時に解析対象となる可能性があるため、今後さらに応用分野を広げる上では以下のような展開が考えられる。

- ・ MO 法／MD 法などのようなマイクロ解析手法との整合的フレームの構築 (図 3-2 参照)
- ・ 不均質場における亀裂媒体の状態変化との連成

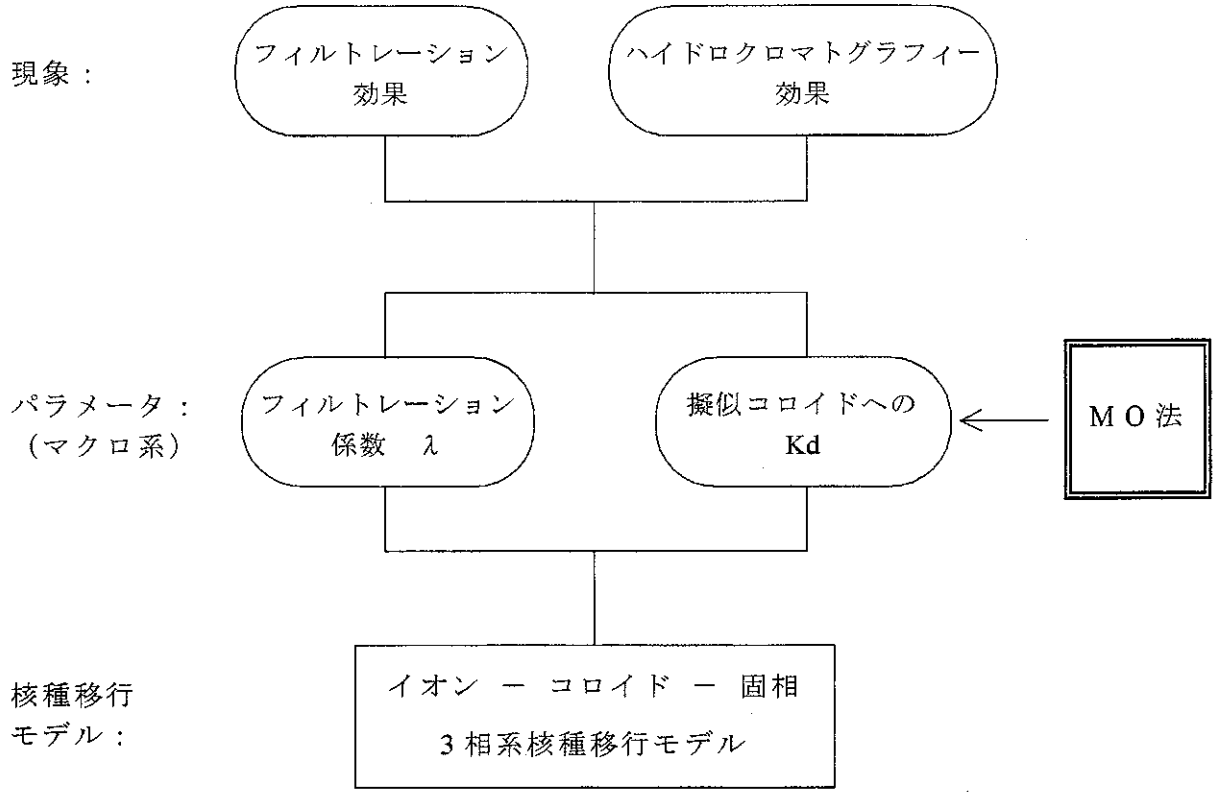


図 3-2 MO 法も含めた不均質場としてのコロイド影響解析フレーム

3.3 自由エネルギー最小化法

3.3.1 序

3.1 節で述べた MD 法／均質化法のようなマイクロ／マクロの結合的アプローチ法に対し、ここでは、不均一場において、異種の物質や状態が混在している系において、自由エネルギーがどのように変わるのかを熱力学の近似からアプローチしていく手法（古典熱力学的手法）を論ずる。

即ち、図 3-3 において、MD 法／均質化法の流れが $(A) \rightarrow (D) \rightarrow (C)$ であるのに対し、ここでの方法（以下、自由エネルギー最小化法と呼ぶ）は、 $(A) \rightarrow (B) \rightarrow (C)$ の流れに則ったアプローチ法となる。

この方法の主な特徴は、以下の通りである。

- ・ マクロな不均質場の平衡状態を記述する。
- ・ 気体も存在する形態で自由エネルギーを解析する。
- ・ 既存のデータベースを利用することができる。
- ・ 鉱物が固まるなどの組成の差をすぐに反映できる。

従って、火成活動（岩脈貫入等）による温度上昇でのスメクタイト粘土のイライト化や、変質作用による鉱物組成の変化といったシナリオを核種移行解析に反映することが期待できる手法と言える。

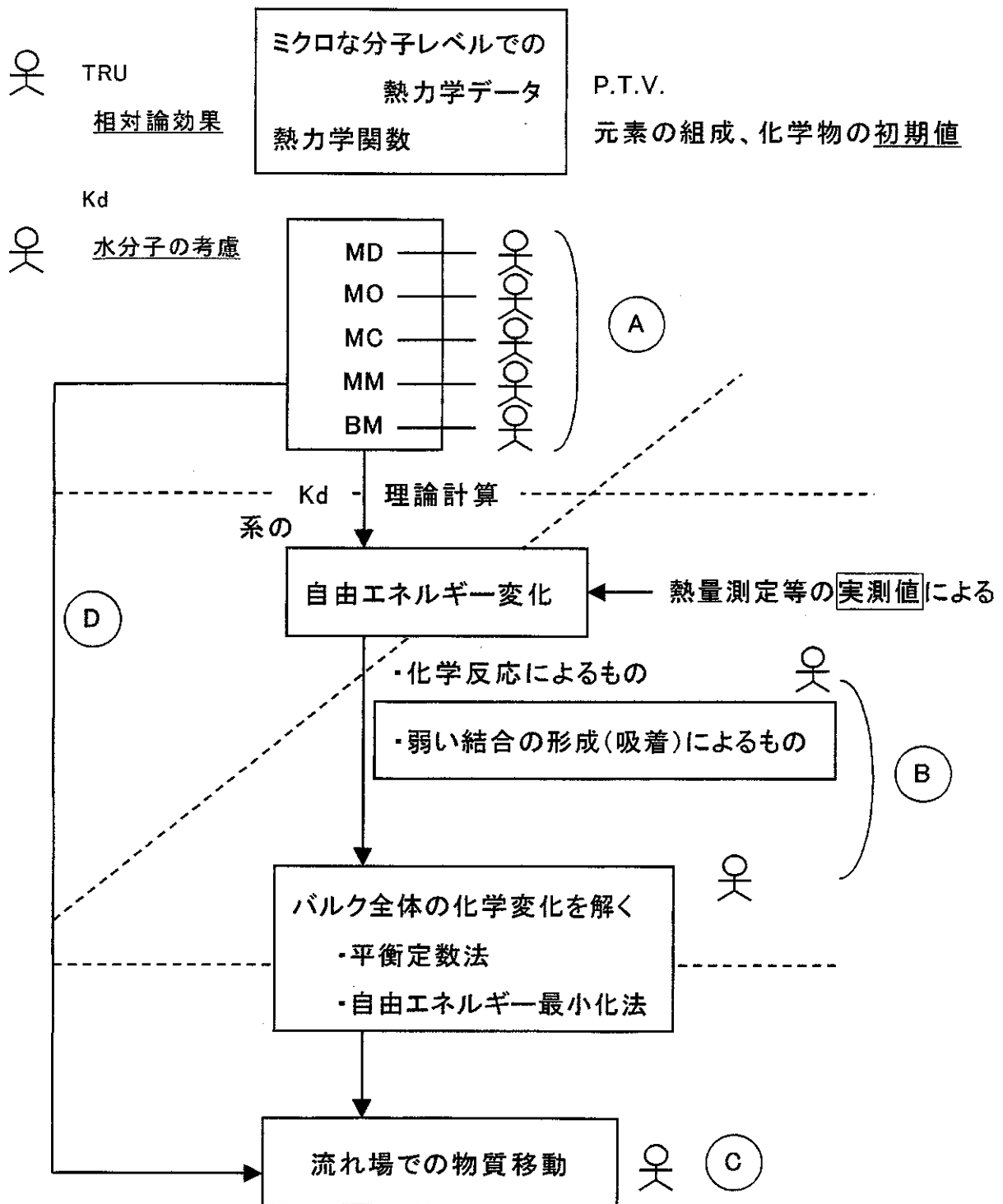


図 3-3 MD 法／均質化法と、自由エネルギー最小化法との比較

3.3.2 解析フレームの検討・開発

ここでは、物質移行・化学反応を連成して解析可能なコードを開発するために、従来とは逆の発想で、化学反応の解析に重点を置き、物質移行を簡素化した解析コードを開発することを目的に、物質移行・化学平衡連成解析モデル「Gibbs free Energy Oriented mass Transport analysis code」（略称「GEOT」）を作成した。

化学反応の計算部分は、速度論は用いず、従来と同じく平衡論を用いた。ただし、解法には PHREEQE などのような平衡定数法ではなく自由エネルギー最小化法を用いた。これは、気・液・固の多相系を同時に扱うことができ、将来の拡張性が高く、化学反応を詳細に解くことができるためである。自由エネルギー最小化法による計算は、平衡計算の公開コードである「MPEC2」⁽³⁻¹⁴⁾⁽³⁻¹⁵⁾ を変更して、物質移行計算コードのサブコードとして組み込んだ。

連成解析は、化学平衡の計算を繰り返し行うため、移行計算のみを行う場合に比べて計算負荷が著しく増大する。そのため、コンパートメントモデル⁽³⁻¹⁶⁾⁽³⁻¹⁷⁾を採用することによって移行計算部分をできるだけ簡略化した。今回作成したバージョンのコードでは、移流拡散/分散のような移行のメカニズムは全て移行係数の値に代表させ、それをユーザーが用意することが前提となっている。そのため、移行係数が既知の場合に限っては1次元体系のみならず、2/3次元体系も解析対象とする能力がある。ただし、体系が複雑になれば、必然的に体系のモデル化や入力データ作成は煩雑となり、計算負荷も増大する。また、対象とする化学種の数が少なく、体系の幾何形状も単純な場合には、詳細モデルによる解析も行えるように、移行係数を直接入力せずに1次元移流拡散方程式を数値的に積分して移行係数をコード内部で算出することができるよう、2種の移行モデル、すなわち、移流移行モデル、拡散移行モデルをオプションとして用意した。

今回開発したプログラムが正常に機能することを確認するための検証計算を行い、定式化ならびにプログラミング作業の検証を行った。

検証が完了した後、水溶性化学種が化学平衡を保ちつつ、複数のコンパートメント間を移行する例題を解き、今回開発したコードが意図した通りに機能していることを確認した。

以上の検証計算と同じコンパートメントから成る系で、化学種の移行評価に「MPEC2」による化学平衡計算を随伴させる問題設定で、各モデルの試算を行っ

た。その結果をまとめると下記のようになる。

- ・ 移流移行モデル

5 個の同一サイズのコンパートメントを直列に接続した系での移流移行による物質移行の問題を扱った。10⁴年までの過渡解析を行い、有意な初期インベントリの値をもつほとんど全ての化学種はこの期間の間に下流側に移行を完了していることが示された。また、化学平衡を成り立たせるという条件を課しているために、全ての化学種が一様に流れに沿って移行するのではなく、化学種によってはほとんど移行しないようにみえるものがある等、移行のみの評価では起こり得ないような複雑な振る舞いも確認した。

- ・ 拡散移行モデル

前の問題での移流による移行を拡散に換え、初期インベントリは、ここでは体積の非常に大きな最上流端のコンパートメントにだけ与えることで、擬似的に濃度固定の境界条件を課した。結果は、誤差はかなり大きいものの、解析終了時刻の 10⁴年で全体系中でほぼ均一の濃度になっていて、近似的に定常状態になっていることを確認した。

- ・ 移行係数モデル

全てのコンパートメントがそれぞれ少しずつ異なる初期インベントリをもつ体系で、移行係数モデルによる定常状態への移行を模擬した。「MPEC2」の収束判定条件を default 値そのままとすると、明らかに化学種の質量保存が満たされなくなるので、変数"conv"の入力値を全てのコンパートメントについて default の 0.1 から 0.001 に換えて解の精度を上げる必要があった。各コンパートメントについて、自由エネルギー、全圧力、それに元素のインベントリの経時変化の結果は、約 3000~4000 年で、自由エネルギー、全圧力、元素のインベントリのそれぞれが全てのコンパートメントでほぼ同一の値となり、ほぼ定常状態が達成されていることを確認した。

3.3.3 今後の展開

ここでは、物質移行・化学反応を連成して解析可能なコードの開発を目的に、物質移行・化学平衡連成解析モデル「Gibbs free Energy Oriented mass Transport analysis code」（略称「GEOT」）を作成した。そして、検証／試算を通して、「GEOT」が当初の想定通りの機能を有することを確認できた。

但し、今後の課題としては、「GEOT」の現在のバージョンでは、「MPEC2」において取り扱う化学種を全て移動性の水性錯体と見なしているため、固相については移動種から除外する、また、液相と気相についても区別を加える、などの改良点が挙げられる。

本手法の特徴は、前述のとおり、観測データに基づく状態を直接、核種移行解析フレームに反映できることにある。

従って、3.1節で述べたMD法／均質化法の解析フレームと同様Kdのようなパラメータの導入が不要となろう。

JNC 殿の FEP リスト上では、ガス移行は当面无視し得る FEP とされているが、例えば岩脈が処分場近隣まで貫入し、周囲の温度が上昇するというシナリオでは、ある条件が成立すると、ガス移行の可能性も無視し得ないかもしれない。このような不測の状態では核種移行がどのような様相を呈するのかを定量的に把握しておくのも、シナリオ解析における不確実性幅の算定（ひいては人工バリア設計への反映）の一つと言えよう。

ここで開発された解析フレームは、地球化学解析結果をコンパートメントモデルとリンクする準動学的解析フレームと言えるものであり、解析対象の場が広域化するほど、本解析フレームの有用性が発揮し得ると考えられる。

例えば、隆起・侵食（シナリオ）に伴う長期間に亘る処分場周囲の地球化学的状態遷移の問題では、時空間ともに長大なスケールの問題を対象としている。本来、JNC 殿の核種移行解析モデル体系でも、概念的にはコンパートメント化して扱うべき空間領域を必要とするシナリオも、解析対象として含むべきとも考えられる。

本解析フレームが扱う主な FEP リスト中の事象は、ガス関連のものであるが、その他にその生成条件等に関与する熱－化学－核種移行に係る FEP の解析をも同時に対象とすべきと考えられるため、今後さらに応用分野を広げる上では以下のような展開が考えられる。

- ・ MO 法 / MD 法などのようなマイクロ解析手法とのリンク
- ・ 不均質場における水理解析モデルとのリンク (連成)
- ・ 不均質系への変化あるいは突発的・化学状態変化に追従し得る自由エネルギー最小化フレームの構築

3 章 の 参 考 文 献

- (3-1) 河村:「無機化合物の分子シミュレーションのために」鉱物学雑誌、Vol.21, No.4, pp229-232 (1992).
- (3-2) 長崎:「リング状ケイ酸クラスターとアモルファスシリカの構造—半経験的分子軌道法の適用可能性について—」原子力バックエンド研究, Vol.5, No.1 (1998).
- (3-3) ㈱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 研究委託内容報告書, PNC ZJ1222 97-007 (1997).
- (3-4) ㈱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 研究委託内容報告書, PNC ZJ1222 98-007 (1998).
- (3-5) 河村:「パソコン分子シミュレーション—分子動力学実験入門—」海文堂(1990).
- (3-6) 呉, 市川:「複合材料の微視的な力学特性評価への均質化逆解析の適用」土木情報システム論文集, Vol.4, pp67-74 (1995).
- (3-7) 市川:「ミクロとマクロを結ぶ力学 I. 岩石の微視的変形・破壊挙動の観察」水曜会誌, Vol.22, No.4, pp193-201 (1995).
- (3-8) 市川:「ミクロとマクロを結ぶ力学 II. 粘弾性体の均質化理論」水曜会誌, Vol.22, No.6, pp344-353 (1996).
- (3-9) 市川, 清木:「ミクロとマクロを結ぶ岩盤力学理論:均質化法とその周辺」地盤工学シンポジウム発表論文集, Vol.42, pp93-98 (1997).
- (3-10) 日本化学会編:「溶液の分子論的描像」季刊化学総説, No.25, 学会出版センター (1995).
- (3-11) K.Kawamura, Y.Ichikawa, M.Nakano, K.Kitayama and H.Kawamura :「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).

- (3-12) Y.Ichikawa, K.Kawamura, M.Nakano, K.Kitayama and H.Kawamura :
「Unified Molecular Dynamics / Homogenization Analysis for Water Flow in
Bentonite」presented for 1998 Int. High-Level Radioactive Waste Management
Conference (ANS), Las Vegas, May (1998).
- (3-13) 長崎, 中田, 津島, 田中, 鈴木 : 「リング状ケイ酸クラスターとアモ
ルファスシリカの構造—半経験的分子軌道法の適用可能性について—」
原子力バックエンド研究, Vol.5, No.1, pp73-79 (1998).
- (3-14) M.Uchida: 「 Mpec2: A Code for Multi-phase Chemical Equilibria 」
Compt.Chem., 11, 19(1987).
- (3-15) 内田:「自由エネルギー最小化法による多相化学平衡計算コード:MPEC」
JAERI-M 84-143, 8月(1984).
- (3-16) B.Bolin, E.T.Degens, S.Kempe and P.Ketner: 「The Global Carbon Cycle
(SCOPE13)」 John willy & Sons(1979).
- (3-17) L.Romeo, L.Moreno and I.Neretnieks: 「Fast Multiple-path Model to
Calculate Radionuclide Release from Near Field of a Repository」 Nucl.
Technol., 112,89(1995).

4. 不均質媒体系の解析フレームの検討

4.1 概要

現在、第二次とりまとめに向けて不均質場における様々なシミュレーションが実施されている。現状のシミュレーションは：

- ・地質学的データの不足
- ・計算機処理能力（速度，記憶容量）の制約
- ・シミュレーション・プログラム整備状況

などがあいまって，簡略化した計算モデルが使用されている。

3章では微視的視点に基づいた最新の様々な解析モデルが提案されているが，現状の解析ツールは必ずしもこれらの研究成果を考慮するのには適していない。

4章では現在進められている最新のモデル，解析手法とそれらから求められるパラメータ群を現在実施中のシミュレーションモデルに導入し，比較計算を実施するものである。特に：

- ・不均質場における局所的な現象
- ・大規模計算

に注目した検討を実施した。

4.2 背景

(1) 簡略化モデルの現在

現在、第二次とりまとめに向けて実施されている不均質場におけるシミュレーションのうち、多孔質媒体中における水理／核種移行解析は、以下のような手順で実施されている：

- ① 水理解析コードによって地下水流れ場を求める（水理解析）
- ② ①で求めた流れ場から流線を抽出する（流線抽出）
- ③ ②で抽出した流線を使用して核種の崩壊、吸着等を考慮して移流／拡散方程式を解く（核種移行解析）

上記のうち①には通常、有限要素法を使用した三次元解析コード（現状では「TAGSAC」または「S-SURF3D」）が使用される。

②に関しては現状ではパーティクルトラッキング法による流線抽出コード（「TR3D」）を使用している。③ではその流線に沿った一次元解析を「CRYSTAL」⁽⁴⁻¹⁾などのコードを使用して実施するのが現状である。有限要素法を使用した三次元解析コードも存在はしているものの実用レベルでは使用されていない。

核種移行解析では移流／拡散の他：

- ・核種の崩壊
- ・吸着
- ・沈殿

などの現象も扱う必要がある。また核種の崩壊系列を考慮すると非常に多くの方程式を解かなければならず、三次元解析は現状の計算機リソースでは実用的に困難である。また安全評価にあたっては：

- ・ 10^6 年～ 10^8 年単位の長いスパンでの計算が必要とされる
- ・不確定な事象が多いためパラメータスタディが重視されている

ことから効率的な計算が必要である。現在使用されている計算コードはラプラス変換等厳密解に基づく手法が中心である^{(4-1)~(4-7)}。

このような手法，特に核種移行解析では，厳密解に基づく手法は，流線を1メッシュとして近似するような手法であるため，線形な支配方程式では問題ないが，吸着量が濃度の非線形関数となるような場合には適用することができないという問題点がある。

より現実的な安全評価を実施するためには三次元核種移行解析手法を確立する必要があるが，そのためには高速計算環境の実現が不可欠である。

水理解析に関しては不均質場を取り扱うことが大きな技術的課題であった。場の不均質性によって生じている現象（流れの乱れ，分散）を模擬するには非常に細かいメッシュが必要であったが，並列計算利用技術の進歩によって 10^7 メッシュレベルの問題も解けるようになっている（例：LLNLのParFLOWプロジェクト：<http://www.llnl.gov/CASC/parflow/>，図4.1参照）。

同様に，より広い領域のモデル化も可能となっている。測定データやその信頼性の問題もあるが，より広い範囲の領域をモデル化することによってニアフィールドにおいても動水勾配等の現実的な設定が可能となる。

4.3 不均質場における実現現象シミュレーション

(1) マクロフレーム

4.2 節では水理／核種移行解析のみに着目したが，核種移行現象をシミュレートするためには：

- ・地球化学
- ・熱
- ・応力
- ・地下水流れ（水理）

などの様々な現象に着目しなければならず，また計算にあたっては：

- ・透水係数
- ・分散係数
- ・分配係数

などの様々なパラメータが必要である。

例えば核種移行により地下水濃度すなわち流体の密度が変化するため，濃度変化によって地下水流れの状況は変化する。また，それによって岩盤内の温度分布も変化する。上記の分散係数，分配係数などは温度に依存するため，それらのパラメータの変化によって濃度分布が影響を受ける，といった具合に全ての現象は連成している。現状の解析ではそれぞれの現象の連成はあまり考慮されていない。

より精度の高い解析を実施するためには，現在実施されている一方通行的な手法ではなく，複数の物理現象の相互作用を考慮する必要がある。これまでも熱-応力-水理-核種移行を同じ有限要素メッシュを使用して一括して解くコードも開発されているが，記憶容量の制限があるため，三次元での解析は困難であった。

また，上記のような方程式レベルでの連成でなく，緩衝材内と地下水流中の核種移行のように，それぞれ別々の解析コード（例えば Meshnote：緩衝材，CRYSTAL：地下水流中）を使用する場合も，CRYSTAL のソースタームとして Meshnote の計算結果を入力するのみであり，例えば沈殿効果の緩衝材内核種移行

への影響は考慮されていない。

より現実的な解を得るためには、これら既存のコードを組み合わせた計算を効率よく実施する必要がある。

(2) ミクロ/マクロフレーム

これまで紹介してきた：

- ・ 透水係数
- ・ 分散係数
- ・ 分配係数

などのパラメータ導出に関しては、経験的、実験的知見、計測結果に基づいた手法が中心として使用されてきた。昨今の計算機の高速化、並列計算技術の進歩によって、より大規模な三次元モデルの解析も可能となるが、有効な三次元解析の実施のためには、上記のパラメータを合理的な手法によって求める必要がある。しかしながら、広範囲な対象に対して計測や経験に頼ることは困難である。

上記のようなパラメータは様々な物理現象の影響を、マクロな微分方程式系で考慮するために設定されるものであり、これらを正確に求めるためには、様々なミクロな現象、プロセスを正確にモデル化する必要がある。

このようなミクロな現象を経験的な知見を使用することなしに、予測できる手法として：

- ・ 分子動力学法 (Molecular Dynamics Method, MD)
- ・ 分子軌道法 (Molecular Orbital Method, MO)
- ・ 自由エネルギー最小化法
- ・ ボルツマン法

などが注目されている。

これらのミクロ解析手法のみで三次元不均質場に関する問題を解くことも理論的には可能であるが、計算機の処理能力や容量を考慮すると、従来使用していた

有限要素法や差分法などのマクロ手法の補助的な手法として位置づけるのが妥当である。したがって、マイクロ手法の結果をマクロ手法で使用できるようにするための均質化手法が必要となる。

すでに述べたように、これらのパラメータは温度や濃度などの状態量の関数であり、非定常的な現象の進展によって時々刻々とパラメータそのものも変化することが予想される。現状のシミュレーションではこれらの値をある条件を仮定して固定値を使用しているのが現状であるが、より現実的な計算を実施するためにはこれらのパラメータを更新しながら進めていく必要がある。

(3) 連成問題解析手法

ネットワーク接続された PC あるいは EWS 上に ORNL で開発されたメッセージパッシングライブラリ「PVM(Parallel Virtual Machine)」⁽⁴⁻⁸⁾を搭載すれば、PC/EWS 群をひとつの仮想的な並列計算機（クラスタ）として稼働させることが可能となる（図 4.5 参照）。PVM は分散処理に適しており、自動連成計算を実施するための環境構築に適している。

本研究では緩衝材核種移行解析一次元コード「Meshnote」と天然バリア中核種移行解析一次元コード「CRYSTAL」を例にとって連成解析フレームを構築した。

4.4 多要素による逆ラプラス変換手法の開発

三次元並列有限要素法によって、水理解析、核種移行解析を含む詳細な三次元解析が効率的に実施可能となるにはまだまだ時間がかかり、水理／核種移行解析にあたっては当面は現在使用しているような簡略化法を使用していく必要がある。

多孔質媒体中における CRYSTAL を使用した現在の計算手法は：

- ・1 流線 1 メッシュとしているため線形の条件でしか計算ができない
- ・流線間の相互作用を考慮していない

などの制約があるため不均質場のシミュレーションには適していない。より現実的な解析を実施するためにはこれらの点を改良する必要がある。現在の CRYSTAL を流線方向にメッシュ分割を可能としたバージョン「m-CRYSTAL」を開発することによってパラメータの局所的な空間分布を考慮した解析が可能となる（図 4.6 参照）。「m-CRYSTAL」を使用して 3 章で述べたコロイド輸送モデルを使用した計算を実施した。

「CRYSTAL」では逆ラプラス計算手法として Talbot 法が使用されている。代表的な逆ラプラス計算手法として、Crump 法および細野法などが知られている。本研究ではそれらの諸解法についても、安定性、適用性および精度について比較した^{(4-1)~(4-7)}。比較の結果細野法がもっとも安定で効率的に解を得られることがわかった。

4.5 並列三次元有限要素法による広域水理解法

ニアフィールドにおける地下水流れ場を求める場合、従来は計算機の能力の制約から、一様な動水勾配を仮定した理想的な境界条件を設定していた。現実的な解析を実施するためには、より広域な対象を解析する必要がある。より広域な対象を解析する場合、従来より大規模な計算モデルが必要になるが、並列計算機を使用すればこの問題を解決できる。

4.2 節で示したような不均質場を対象とした場合、図 4.7 および図 4.8 に示すようにメッシュ分割によって解が大きく異なる。より現実的な解を得るためには充分細かいメッシュが必要となるため、並列計算手法の導入は有効である。

本研究では全体領域を分割しデータを取り扱う SPMD (Single-Program Multiple-Data) 型の並列有限要素法コードを開発した (図 4.9 参照)。この手法は大規模計算に適している。

有限要素法は一般に並列計算機向けでないと考えられてきた。これは、非常に計算時間を要する大規模疎行列の数値解を求めるプロセスにグローバルな変数参照を伴う前処理が使用されているためである。近年進境の著しい、並列計算向けの前処理手法を導入した計算を実施した。

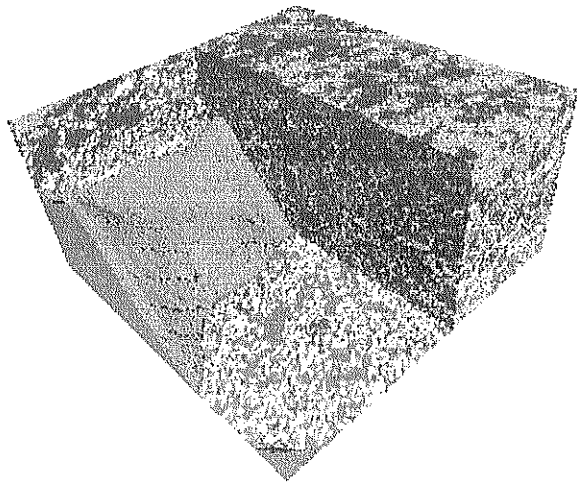
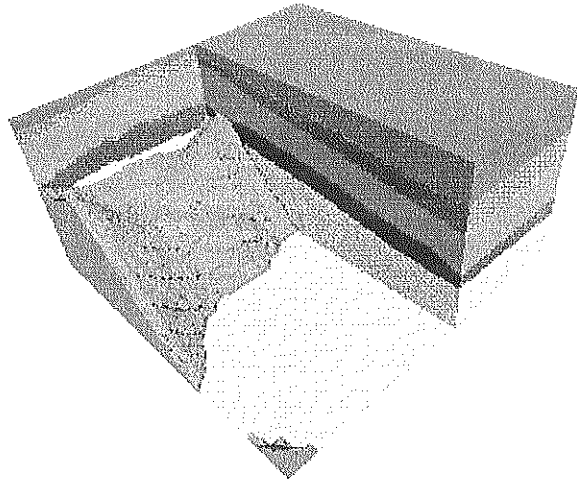


図 4.1. 均質場／不均質場モデルの概念図
(LLNL ParFLOW プロジェクト)
<http://www.llnl.gov/CASC/parflow/>

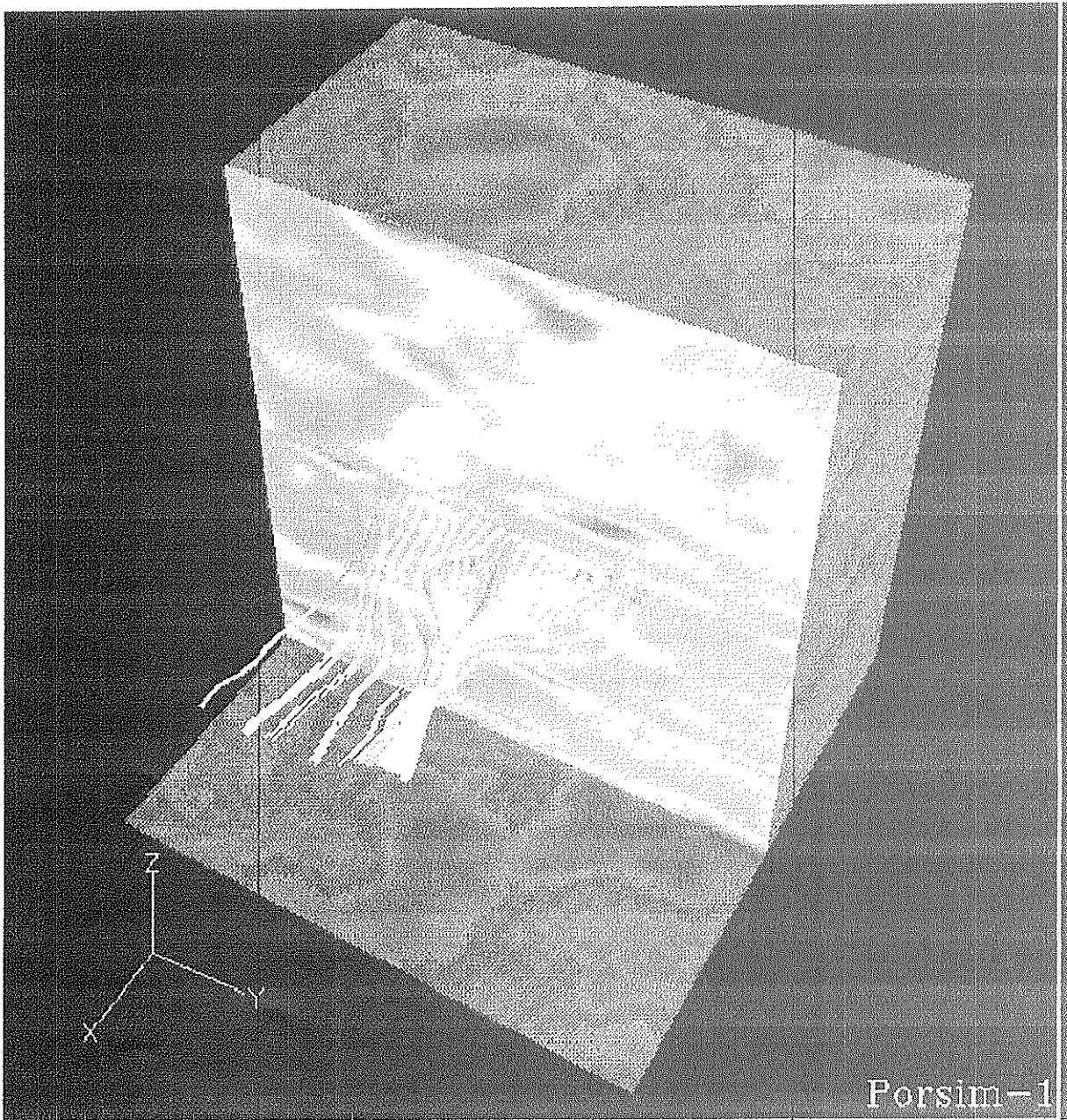


図 4.2 多孔質不均質場性能評価モデル（透水係数分布）と TR3D によって算出された流線（SGSIM アルゴリズム（Sequential Gaussian Simulation）^(4,2)によって算出された不均質場使用）

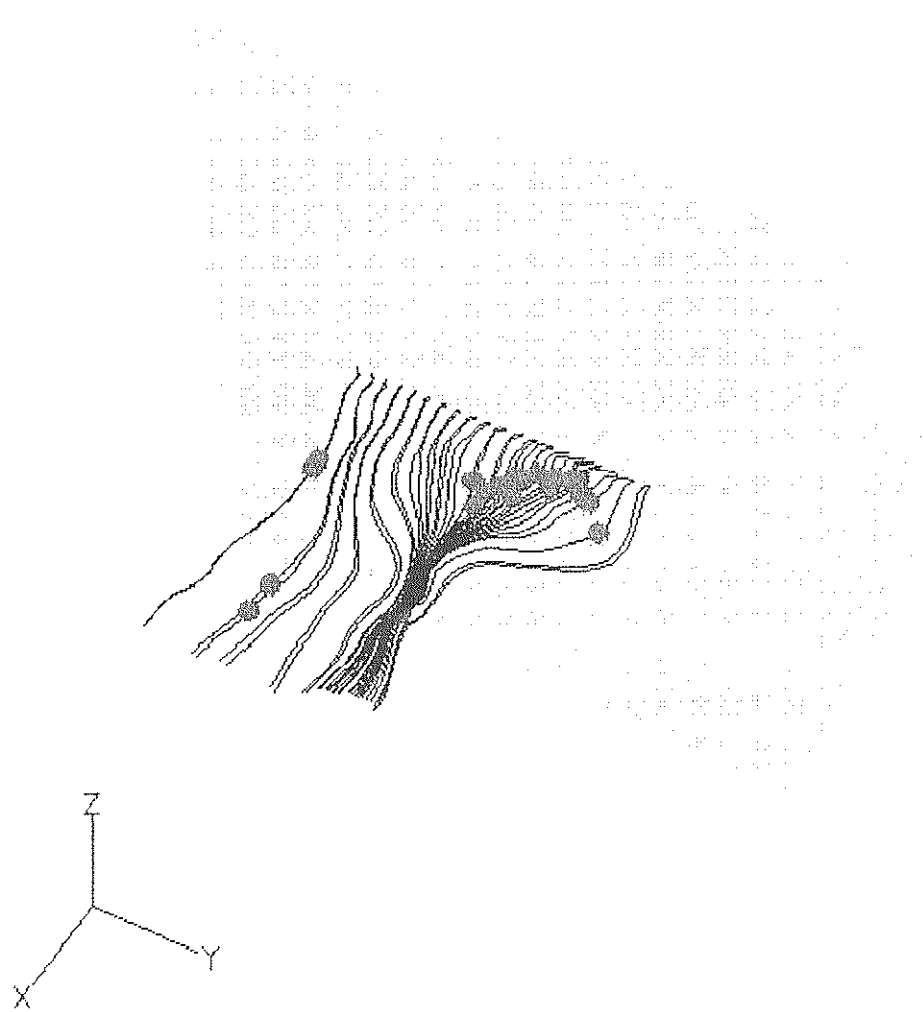


図 4.3 多孔質不均質場における TR3D によって算出された流線
 (SGSIM (Sequential Gaussian Simulation) ⁽⁴⁻²⁾によって算出された
 不均質場使用)

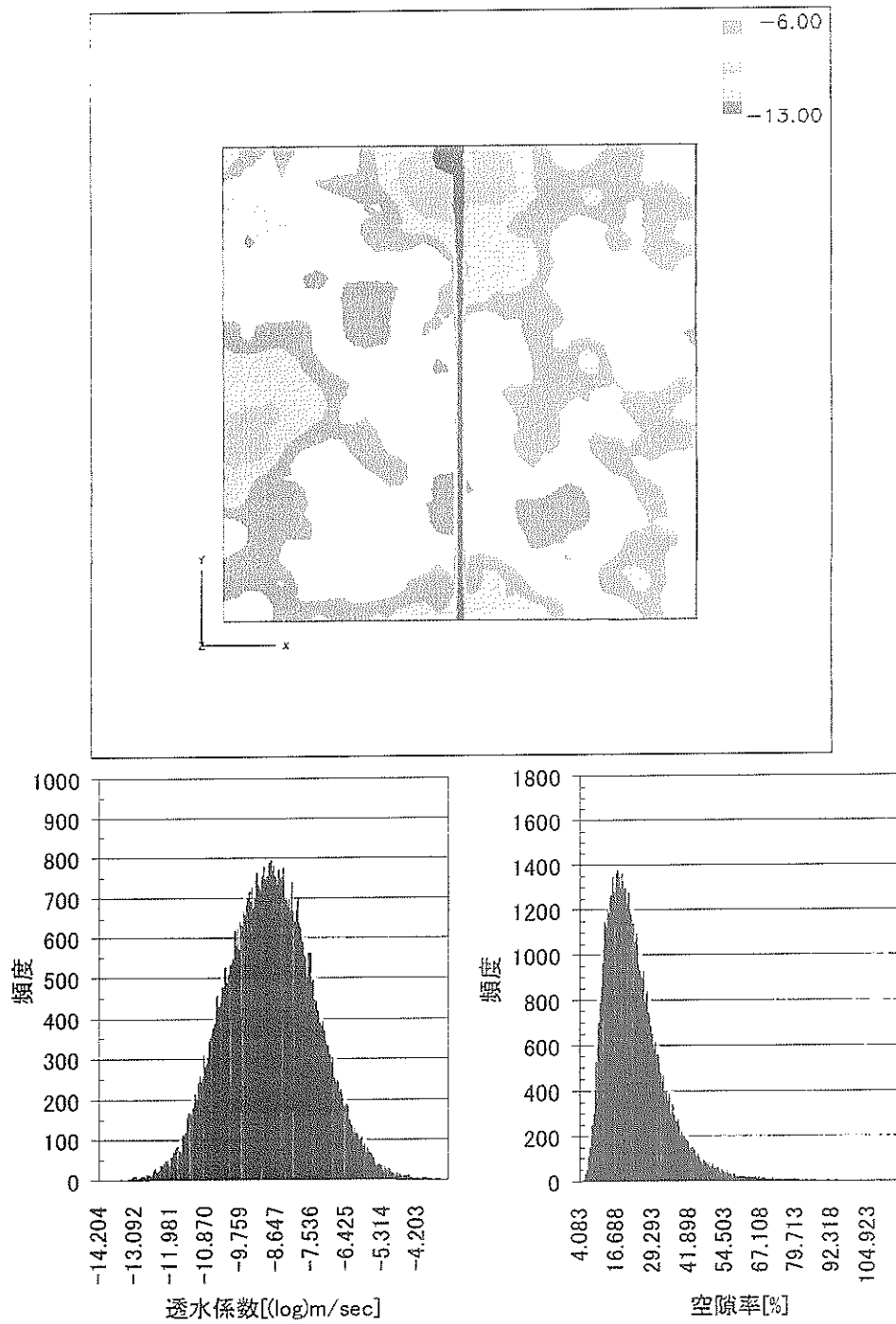


図 4.4 SGSIM 法⁽⁴⁻²⁾によって算出された透水係数分布
(対数正規分布)

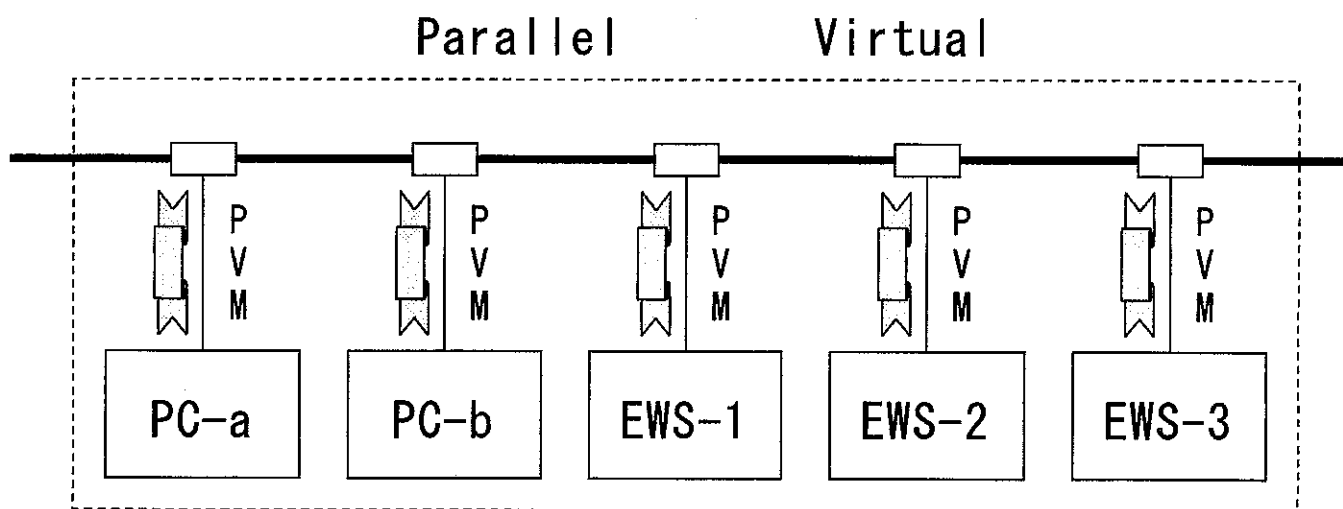
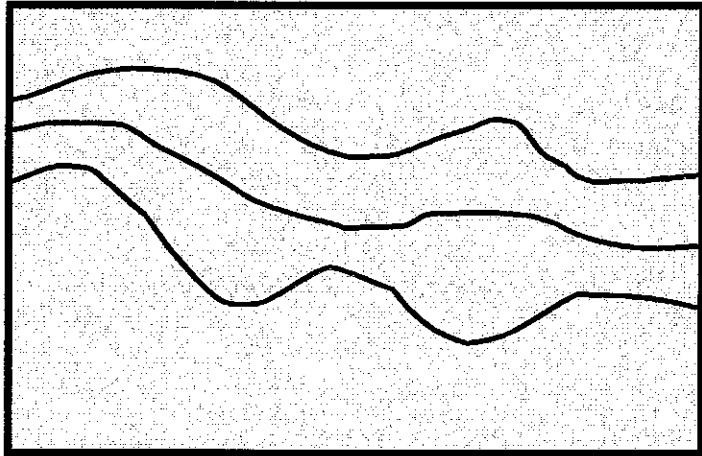
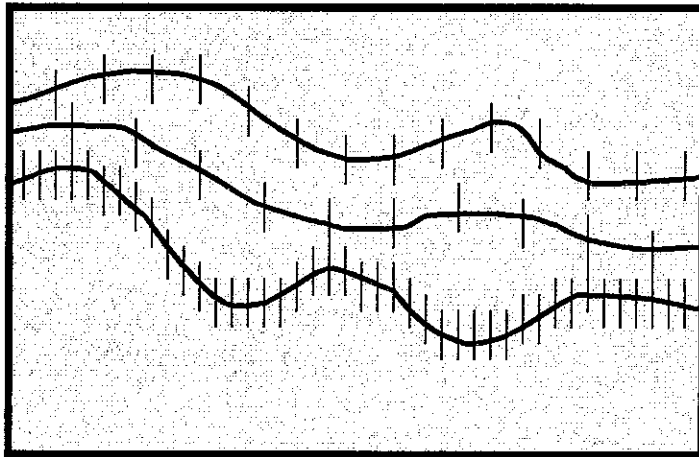


図 4.5 PVM によって接続された PC および EWS 群



CRYSTAL

- ・1流線=1メッシュ



m-CRYSTAL

- ・1流線=流れ方向メッシュ分割
- ・パラメータ不均質性考慮

図 4.6 「m-CRYSTAL」の特徴

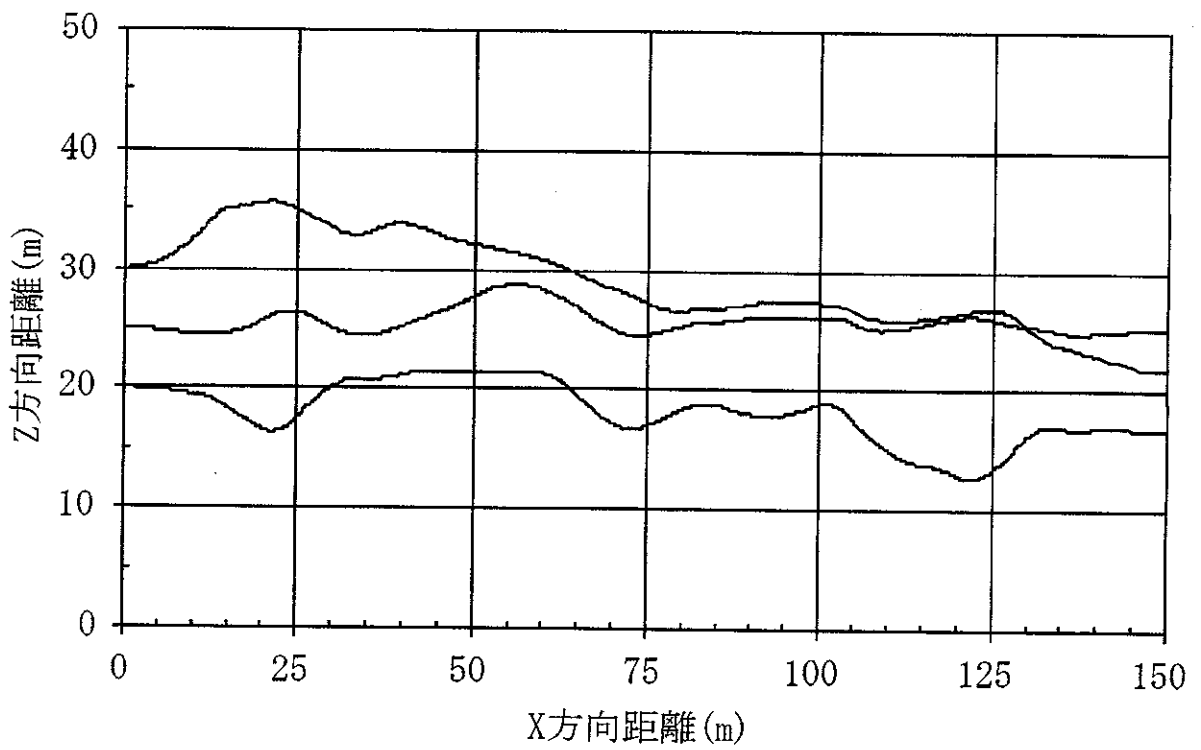
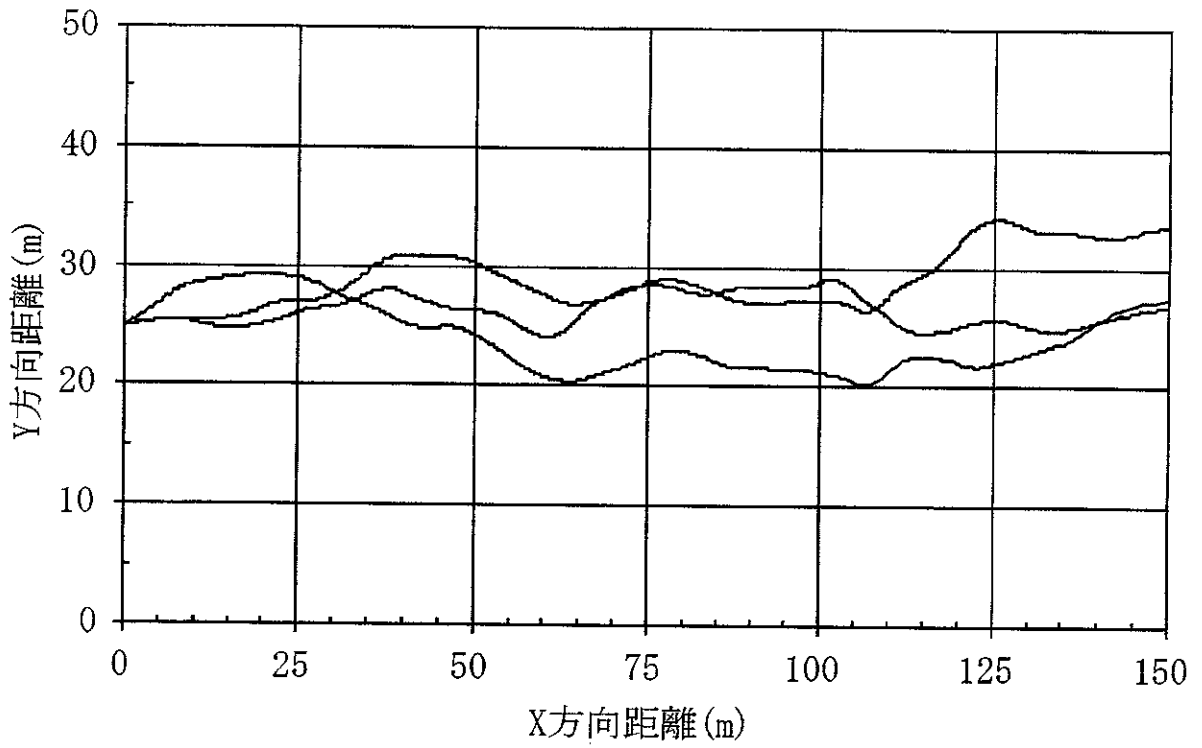


図 4.7 不均質場における流線分布 (メッシュ分割幅 = 5.00m)

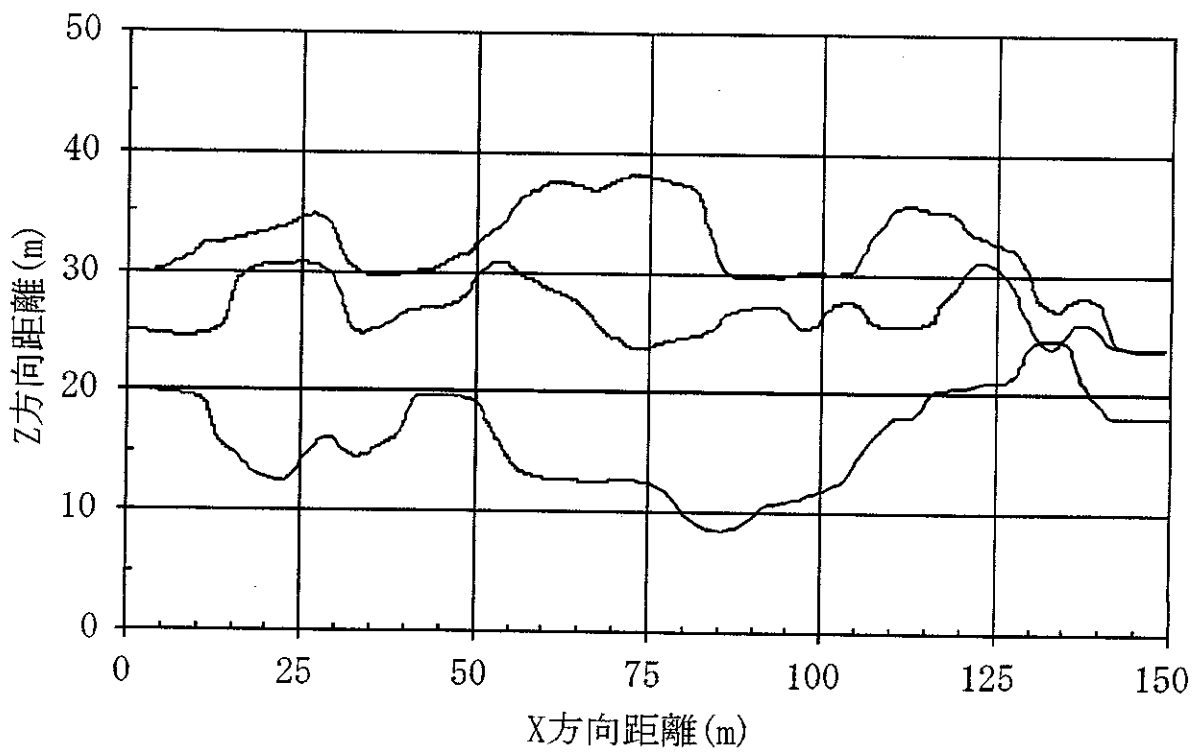
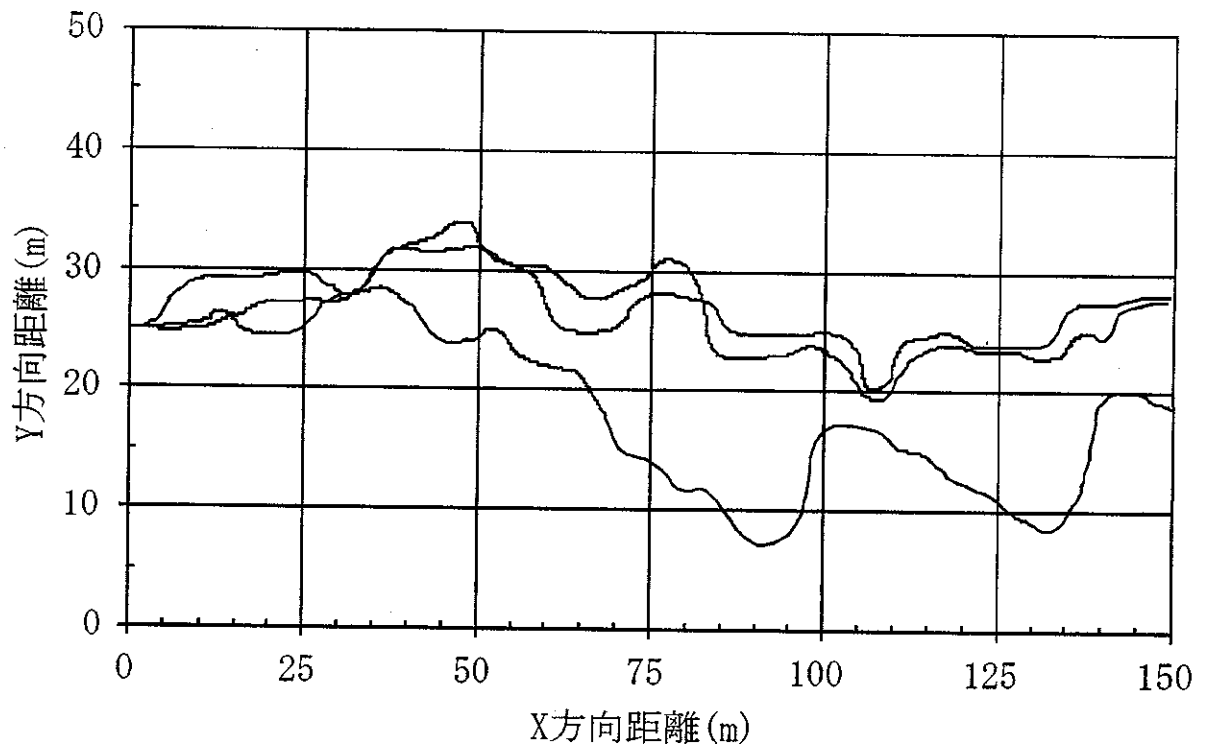


図 4.8 不均質場における流線分布 (メッシュ分割幅 = 1.25m)

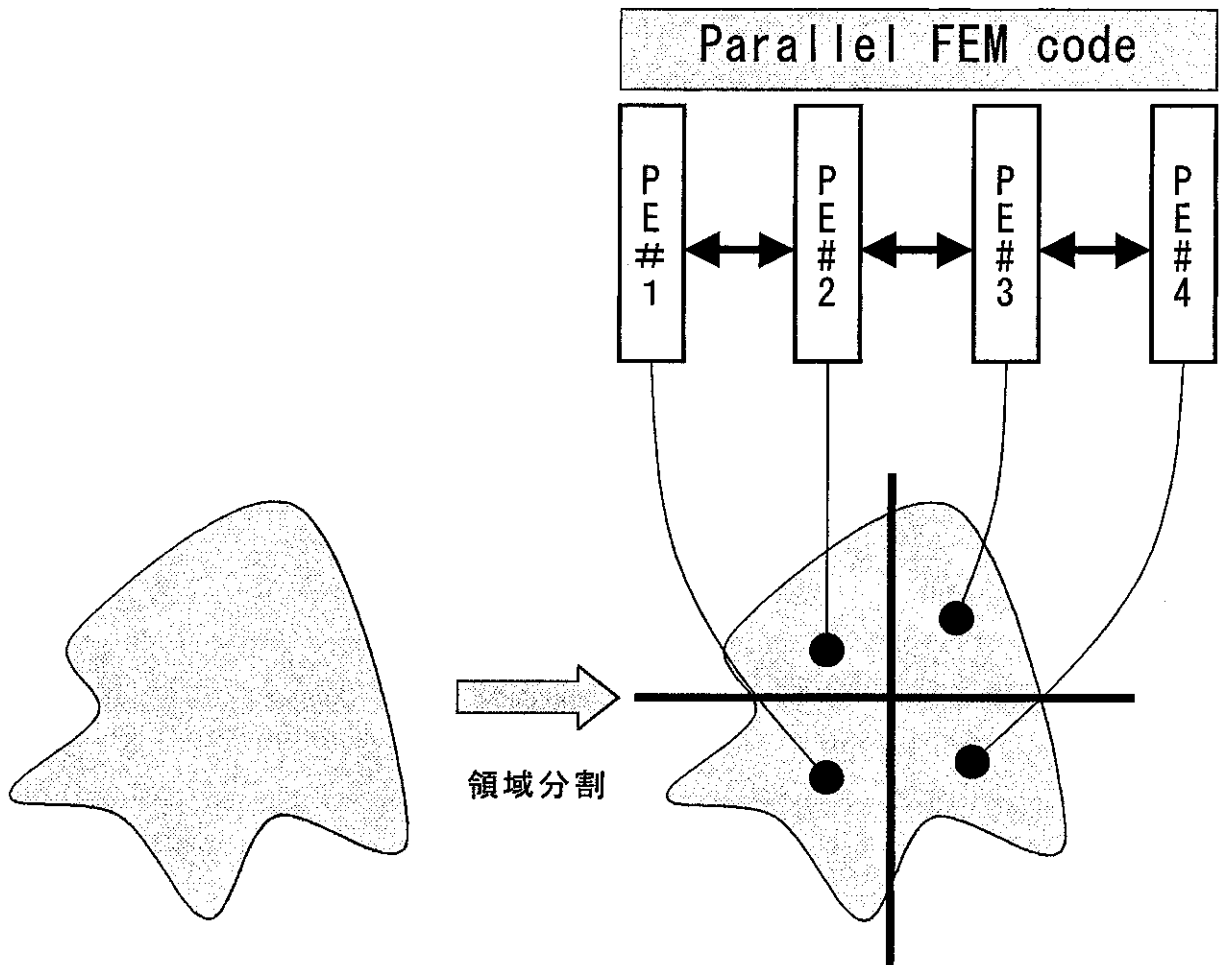


図 4.9 並列有限要素解法の概念図

4 章 の 参 考 文 献

- (4-1) K.Worgan and P.Robinson: 「CRYSTAL: A Model of Contaminant Transport in a Densely Fissured Geosphere 9105-1 Version 1」 Intera Environmental Division (1992).
- (4-2) C.V.Deutch and A.G.Journal: 「GSLIB : Geostatistical Software Library and User's Guide 2nd Edition」 Oxford (1998).
- (4-3) P.C.Robinson and P.R.Maul 「Some Experience with the numerical Inversion of Laplace Transforms」 Math. Engng Ind., Vol.3, No.2, pp111-131 (1991).
- (4-4) 細野: 「数値ラプラス変換」電気学会論文集 A99 卷 10 号, pp44-50 (1979) .
- (4-5) F.R.De Hoog, J.H.Knight and A. N. Stokes: 「An Improved Method for Numerical Inversion of Laplace Transforms」 SIAM J. Sci.Stat. Comput. Vol.3, No.3, pp357-366 (1982).
- (4-6) K.S.Crump: 「Numerical Inversion of Laplace Transforms Using a Forier Series Approximation」 Journal of the Association for Computing Machinery, Vol.23, No.1, pp89-96 (1976).
- (4-7) A.Talbot: 「The Accurate Numerical Inversion of Laplace Transforms」 Journal of the Institute of Mathematics and its Applications, Vol.23, pp97-120 (1979).
- (4-8) A.Geist et. al.: 「PVM : Parallel Virtual Machine, A Users' Guide and Tutorial for Networked Parallel Computing」 MIT Press (1994).

5. 包括的な性能評価スキームの検討

本研究では、不均質場における水理／核種移行並びに地球化学評価に関して、地下水はもとより、コロイド及びガスによる核種移行も念頭に置き、3章では最新の研究成果を用いた解析モデルを開発し、4章ではそれらを性能評価解析において考慮するためのフレームワークとして、特に、

- ・ 連成現象
- ・ 大規模計算

に関する検討・開発を実施した（図 5-1, 5-2 参照）。

不均質場における水理／核種移行並びに地球化学評価で問題となるのは、

- ・ 現象時間の長さ（ $10^6 \sim 10^8$ 年）
- ・ 実測データの不足
- ・ 境界条件の環境依存性
- ・ 実験室レベル実験と実現象とのスケラビリティ，整合性

である。また、不均質場における水理／核種移行並びに地球化学を支配する物理化学的現象は複雑で、マイクロレベルからマクロレベルまで様々な現象が連成して生じている。

これまでの性能評価解析では、4章でも述べたように、

- ・ 連成現象を考慮しない（状態変数のパラメータへのフィードバックを考慮しない）
- ・ 特定の条件下での実験結果等から工学的評価式等によって得られたパラメータを使用する

といった仮想的な条件下で保守側の解析を実施してきたが、3章で紹介されたコロイドの例のように必ずしも保守側に働かない条件もあり、今後の実験的、理論的および計算科学的研究の発達によって明らかにしていかなければならない問題点は多い。

計算科学的な視点から考えると、

- ① 仮定や工学的評価式を使用しないモデルの開発
- ② ミクロ～マクロの幅広い現象をカバーできる解析モデル／フレームの開発
- ③ 複数現象の連成を模擬可能な解析モデル／フレームの開発

が今後重要な技術的課題である。このような点から 3 章で開発された分子シミュレーション法／均質化法の結合解析手法は興味深い。

ただ、全てのミクロな物理化学的プロセスを計算機上で再現することは現状の計算機資源ではもちろん、現在日米で開発されている数十 Tera Flops～Peta Flops クラスの計算機をもってしても不可能である。今後は、計算機の処理能力の現状とその向上を考慮しながら、理論／実験、計算科学の各分野の専門家が協力して、以下のような研究を続けていく必要がある。

(1) 物理化学モデルの構築，検証

- ・ 個々のプロセス計算モデルの精度とスケーラビリティ検証のためのフィールド実験，計測
- ・ 支配的なパラメータ，現象の把握により，ある程度工学的判断に基づき解析モデルを構築する
- ・ 三次元不均質場における現実的な境界条件の設定手法

(2) 大規模計算フレームの構築

- ・ 4 章でも紹介した複数現象の連成を模擬可能な解析モデル／フレームを任意の物理化学モデルをプラグ・イン可能なプラットフォームとして拡張する
- ・ 大規模データの処理（解析モデル作成，結果可視化など），保存のための効率的手法を開発する

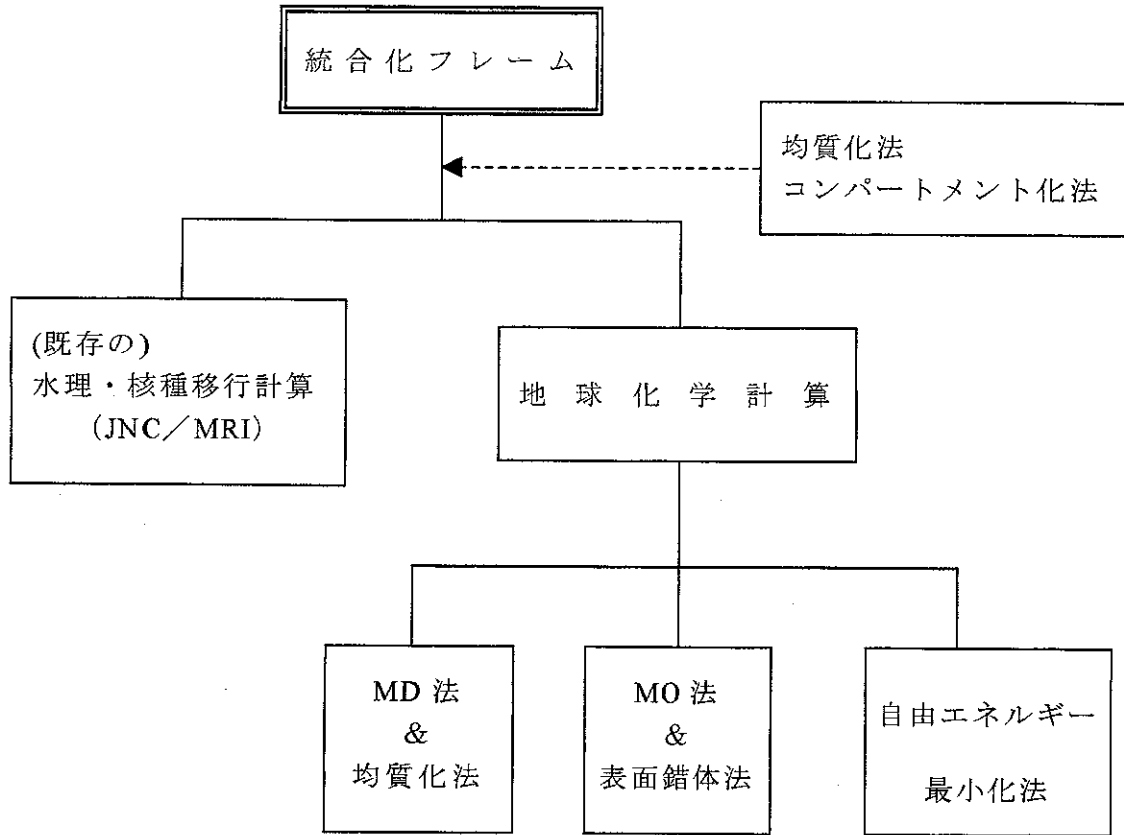


図 5-1 先進的評価モデルの適用を考慮した包括的性能評価スキーム

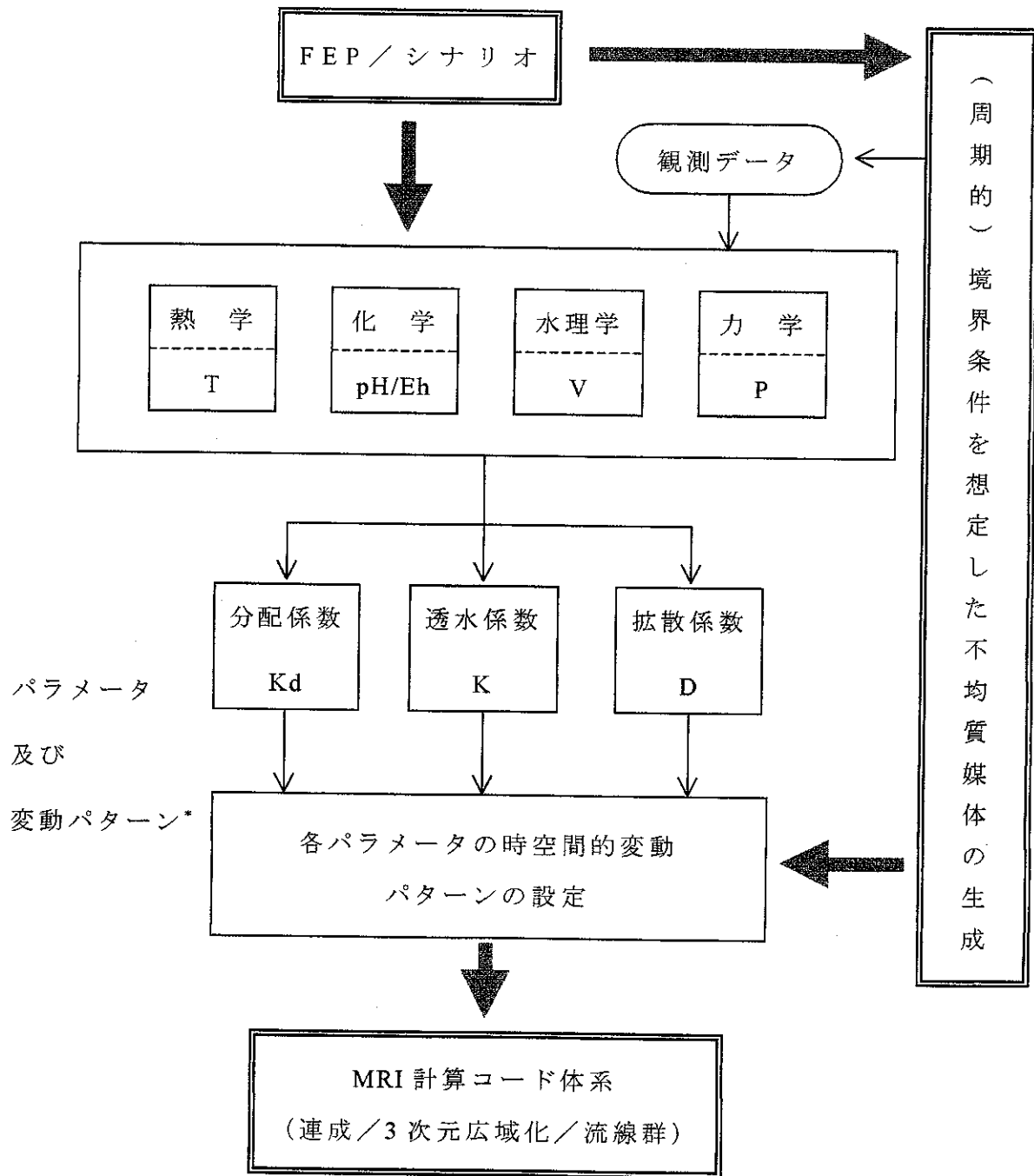


図 5-2 均質化法やコンパートメント化法をベースとする場合の統合化フレーム

* モデル・手法によってはこれらのパラメータの定義が不要となり得る。あるいはそれらに置き換わるパラメータや評価式を新たに導入する必要もあり得る。

6. おわりに

本研究は、最新の研究情報や成果を反映するため、特に、大学との研究協力を中心として遂行された。

(1) シナリオの抽出

JNC 殿の第 2 次とりまとめによる第 1 ドラフト内容等、JNC 殿の研究結果に対し、大学との意見交換が行われた。そのコメント等を検討した結果、不均質媒体や不確実性評価に視点を当てた FEP/シナリオが検討・抽出された。

(2) 先進的評価モデル及び手法の開発

(2-1) 不均質媒体中での核種移行モデルでは、MD 法と均質化法の融合化に基づくモデル化と、自由エネルギー最小化法に基づくモデル化が行われた。その結果、特に、不均質媒体中の拡散場、収着問題への対応が、マイクロレベルから広域的レベルに亘って可能な解析フレームが検討・開発された。

(2-2) 不均質媒体中のコロイド影響評価モデルでは、コロイド粒子の水流れによるハイドロダイナミック・クロマトグラフィー効果や、鉱物の空隙によるフィルトレーション効果も考慮した不均質媒体中の物質移行モデルが検討・開発された。また、分子軌道法を用いたコロイド解析・評価への有効性も見出された。さらに、これらの効果を従来のマクロモデル体系との比較を通じ、その反映方法が検討・開発された。

(2-3) 不均質媒体中での水理解析モデルでは、(2-1)で開発された均質化法ベースのモデル概念とのアナロジーに基づき、大規模計算フレームの効率化の検討・解析が行われた。

(3) 以上の検討結果に基づき、(1)で抽出された FEP/シナリオを(2)で開発・検討された先進的評価モデル・手法の適用のもとに解析するための包括的性能評価スキームが検討された。また、それらの手法を適用・発展するための課題等が整理された。

謝 辞

本研究は、図 1-1 に示すように、各専門分野毎に、各大学の先生方の御指導のもとに進めることができた。その結果、従来より指摘されてきたいくつかの研究開発上の克服すべき課題を解くべき糸口や今後の研究の方向性などについての有意義な知見が得られたと言える。

ここに御協力いただいた諸先生方に深く謝意を表する次第である。

1999 年 2 月

株式会社 三菱総合研究所

研究協力者リスト

(五十音順)

氏名	大学名	所属	役職
市川 康明	名古屋大学	大学院工学研究科地圏環境工学専攻	助教授
大江 俊昭	東海大学	工学部原子力工学科	助教授
河村 雄行	東京工業大学	大学院理工学研究科地球惑星科学専攻	教授
佐藤 正知	北海道大学	大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻	助教授
鈴木 篤之	東京大学	大学院工学系研究科システム量子工学専攻	教授
栢山 修	東北大学	大学院工学研究科量子エネルギー工学専攻	助教授
長崎 晋也	東京大学	大学院工学系研究科システム量子工学専攻	助教授
渡辺 邦夫	埼玉大学	大学院理工学研究科生物環境科学専攻	教授

主査