

# ニアフィールド現象の変遷に関する 動的解析手法の開発

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果概要)

技 術 資 料		
開示区分	レポ ー ト No.	受 領 日
Σ	J1281 94-008	1995.2.3
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1994年 3月

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理してください。また今回の開示目的以外のことに使用しないよう特に注意してください。

本資料についての問い合わせは下記に願います。注)

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

# ニアフィールド現象の変遷に関する 動的解析手法の開発

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果概要)

1994年 3月

## 要 旨

高瀬博康\*

動的解析の手法開発として、人工バリア内が拡散支配である限り様々な条件変動やコロイド形成等の新たな現象を考えた場合にも共通して適用可能な広義拡散方程式を導出し、具体的なFEPsに対応するものとして、

- (1) 瞬時平衡、線型吸着、溶解度限界モデル
- (2) 真性コロイドモデル
- (3) 擬似コロイドモデル
- (4) 真性コロイド、擬似コロイド共存モデル
- (5) 非線型吸着モデル
- (6) 水理・化学条件の時間・空間的变化を考慮したモデル
- (7) 沈殿・溶解反応の速度論的表現を加えた真性コロイド、擬似コロイド共存モデル

を作成した。

また、この解析手法を実用に供するために、汎用DAEソルバーSPADEとグラフィカルユーザーインターフェイスSAMGUIを改良した。主たる改良点は、

- (1) SPADEの自動差分機能の追加、方程式入力フォーマットの簡単化、リスタート機能、及び多数回の計算を一括処理するためのユーティリティプログラムの付加
- (2) SAMGUIへのデータ移送と作画の自動化

である。

---

\*日揮株式会社 原子力・環境・エネルギー事業本部

更に、改良されたソフトウェアを用いて、Tc-99を例として決定論的及び統計的感度解析を予備的に実施した。

決定論的解析としては、瞬時平衡・線型吸着・溶解度限界モデルによる計算を行ない、これを標準ケースとして以下のモデルの変動を考えた場合の結果の変化を合計約400ケースについて解析した。

- (1) 真性コロイドモデル
- (2) 擬似コロイドモデル
- (3) 真性コロイド、擬似コロイド共存モデル
- (4) 水理条件の経時変化を考慮したモデル
- (5) 化学条件の（空間的に一様な）経時変化を考慮したモデル
- (6) 化学条件の（空間的に不均質な）経時変化を考慮したモデル

結果として、真性コロイドが存在する場合、大きな核種放出率の増加が生じ得ることがわかった。

統計的解析としては、標準ケースからのモデル及びパラメータの変動を統計的に作成した感度解析を行った。この結果に基づき、決定論的感度解析の網羅性を補完するものとしての位置付けが明らかとなった。特に、人工バリア周辺の地下水条件が一定期間より好ましいものとなりその後元の状態に戻った場合、ゆるみ域が核種についての化学的シンクとなり、一旦ここに沈殿した核種が条件復帰後に一気に放出されることにより、元の化学条件では見られない過渡的なピーク放出率が現れることが示された。このような効果は、従来の決定論的な思考では見落されていたものであり、二つの手法を併用することの利点を示す例とすることができる。

以上の結果から、人工バリアの長期的挙動に関して予想される幅広い前提条件と多岐にわたる現象を共通の手法で網羅するものとして本研究で開発した動的解法手法が有効であることがわかった。

この成果を受け、次年度には、平成三年度報告書で対象とした全ての核種について、多くのFEPsを考えた解析を行うことが可能となった。この様な解析の実施にあたっては、感度解析をより体系的かつ効率的に行える様にするために、SPADEのフロントエンドを若干改良することが必要である。

## SUMMARY

Hiroyasu Takase\*

The generalized diffusion model, which can be applied to variety of phenomena provided mass transport is diffusion dominated, was developed. Utilizing this general configuration, following specific models were formulated;

- (1) usual instantaneous solubility limited, linear sorption model,
- (2) true colloid model,
- (3) pseudo colloid model,
- (4) co-existing true/pseudo colloid model,
- (5) nonlinear sorption model,
- (6) time/space dependent chemical/hydrological condition model,
- (7) co-existing true/pseudo colloid model with kinetic precipitation/dissolution reaction.

In order to make calculations using the above methodology, SPADE (general DAE solver) and SAM GUI (graphical user interface) were modified. Major modifications are;

- (1) addition of following functionalities to SPADE;
  - automatic discretization
  - user friendly format of equation input
  - restart
  - front end to process large number of calculations,
- (2) automation of SPADE results transport to SAM GUI and of subsequent visualizations.

Furthermore, a set of preliminary sensitivity analyses were carried out for Tc-99 as an example.

The deterministic analyses were performed for a number of different modelling assumptions. Central case was defined as the usual solubility limited model, and following conceptual perturbations were also considered;

- (1) true colloid model,
- (2) pseudo colloid model,
- (3) co-existing true/pseudo colloid model,
- (4) evolving (spatially uniform) model,
- (5) evolving (spatially heterogeneous) model,

---

\* Nuclear & Advanced Technology Division, JGC Corporation

Also stochastic sensitivity analyses were executed sampling the conceptual/parameter variations from the central case stochastically. As the result, it was clarified that this approach can improve the completeness of the formation of a chemical sink in the decompressed zone, and thus, in the significant increase of release rate due to the rapid dissolution of the precipitation formed in the perturbed period. This example indicated the possible improvement of the completeness by using the both methods iteratively.

Based upon the above results, now it is clear that dynamical system analysis method developed in this study can be applied to the variety of future conditions and a set of phenomena being expected for the evolution of the engineered barriers.

In the next phiscal year, it can be recommended to perform thorough analyses for all the H-3 nuclides and wide range of FEPs. To do this ,it is necessary to make a minor modification to the front end of SPADE so that the sensitivity analyses can be done in a more systematic and efficient way.



## 1. 動的解析の手法開発

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価、特に人工バリアと天然バリアの複合系であるニアフィールドを対象とした評価では、多くの構成要素と多岐にわたる現象を考慮することが必要となる。しかし、これらの全てを一様に詳細に検討しその結果を性能評価に取り入れることは現実的には極めて困難であり、かつ、必ずしも合理的な方法であるとは言い難い。そこで、性能評価研究の効率的な展開のためには、定量的な感度解析に基づき、諸現象の重要度分類を行うことが必須となる。しかしながら、これまでに開発されてきた感度解析手法は、いずれも評価パラメータについての感度を対象としたものであり、コロイド等による核種移行あるいは環境条件の時間・空間的な変化といった代替的な現象、及び各現象についてのモデル化オプションに関して、これらを種々に変化させた場合の評価結果に対する感度を定量化する実効的な手法は見出されていなかった。

本研究は、評価対象とする現象の取捨、各現象についての数学的モデル化、ならびに各数学的モデルに含まれる評価パラメータ値の設定、という三つのレベルの選択肢の全てについて共通の方法で評価結果に対する感度の定量化を行うことを可能とする手法（動的解析手法）を開発し、関連するソフトウェアの整備を含めて実用化することを目標とするものである。ここでは、この目標のうち手法の開発について以下にまとめる。

本年度の研究における手法開発は、

- ①ニアフィールド内の核種移行に関連する現象(FEPs)を抽出し、
- ②代表的な複数のFEPsに共通して適用可能な解析モデルを作成する、

という手順で行った。

### (1)ニアフィールド現象の変遷に関するFEPsの抽出

従来のニアフィールド内核種移行モデルでは、

- ・拡散支配
- ・瞬時化学平衡
- ・線型吸着
- ・コロイドなし
- ・化学、水理条件は時間及び空間的に一定

ということが先験的に仮定されている。しかしながら、これは従来の「保守的な」評価モデルの多分にstylizeされた性質によるものであり、実際には上記よりもかなり幅広い状況が想定される。そこで、上の諸仮定を覆す可能性があるものという観点から、

- ・人工バリア内の物質移動機構に関するもの
- ・化学反応速度に関するもの
- ・吸着の非線型性に関するもの
- ・多相の移動物質に関するもの
- ・空間的に不均質な環境条件に関するもの
- ・環境条件の時間変化に関するもの

という分類のもとに現在の基本シナリオに対して代替的な現象群を網羅的に抽出した。抽出されたPEPsの一部を表1に示す。

本年度の研究では、抽出された現象のうち人工バリア内が移流支配となることをもたらし得る4つのPEPs(表1参照)を除きその他の全てについて検討の対象とすることとした。

## (2)解析モデルの作成

(1)に述べた様に、従来の核種移行モデルは限定的な仮定を置いたものであるために抽出された現象群の一部についてしか表現することができない。はじめに述べた現在

表1 ニアフィールド現象の変遷に関するF E P S(1)

A. 人工バリア内の物質移動機構に関するもの

(拡散支配に結びつくもの)

- ベントナイト冠水・膨潤による止水効果
- 地下深部の動水勾配が小さいものであること

(移流・分散支配に結びつくもの)

- ベントナイトのイライト化
- 周辺母岩の亀裂中へのベントナイトの侵入による緩衝材の密度低下
- 亀裂中での地下水流によるベントナイトの浸食による緩衝材密度低下
- 施工時のベントナイトブロック間の空隙を通じた選択的流路の形成

B. 化学反応速度に関するもの

- 放射性元素濃度の過飽和
- 遅い吸着による実効的遅延効果の低下

C. 吸着の非線型性に関するもの

- 吸着サイトの飽和
- 競合するイオンの影響

D. 多相の移動物質に関するもの

- 沈殿フロントの移動
- 擬似コロイドの生成
- 真性コロイドの生成
- コロイドの移動、ろ過及びベントナイト空隙の閉塞
- 陰イオン排斥
- 表面拡散
- ガラス固化体の一様 (congruent) / 非一様 (incongruent) 溶解

の感度解析手法の限界は、この点に起因するものであると考えることができる。そこで、本研究では、

- ・各現象に共通の部分を用いた移行方程式としてくり出し、個別の特性を（ある種の）パラメータとして表現すること
- ・外部事象については、これら自体を直接的にモデル化するのではなく、むしろその結果としてニアフィールドの核種移行に生じ得る影響の時間・空間的なパターンを入力することによって間接的に考慮すること

という方針の下に新たな手法を開発した。この手法では、各現象に共通の最も一般的な前提として、

「任意の移行形態（溶存形（陽イオン、陰イオン）、吸着種、コロイド等）をとりそれぞれ異なる拡散係数を有する核種（図1 参照）が、位置 $x$ 、時刻 $t$ において拡散により移行しつつ、化学反応等により他の移行形態に変化（フラックス $\sigma$ ）する。しかも、当該移行形態の拡散係数及び反応の種類と速さは位置、時刻に依存し得る。」

という状況を考える。この時、 $x, t$ において拡散係数 $D$ で拡散する移行形態にある核種濃度 $c=c(x, t, D)$ についての方程式は、

$$\theta \partial c / \partial t = \nabla \cdot (\theta D \nabla c) - \sigma(c, x, t) - \lambda \theta c$$

但し、 $\theta$ ：空隙率

$\lambda$ ：崩壊定数

となる。上式を $D$ について積分すると、各移行形態間でのフラックス $\sigma$ は相殺され全濃度 $C(x, t)$ についての次式が得られる。

$$\partial C / \partial t = \nabla \cdot (\alpha \nabla C) - \lambda C \quad (\text{広義拡散方程式})$$

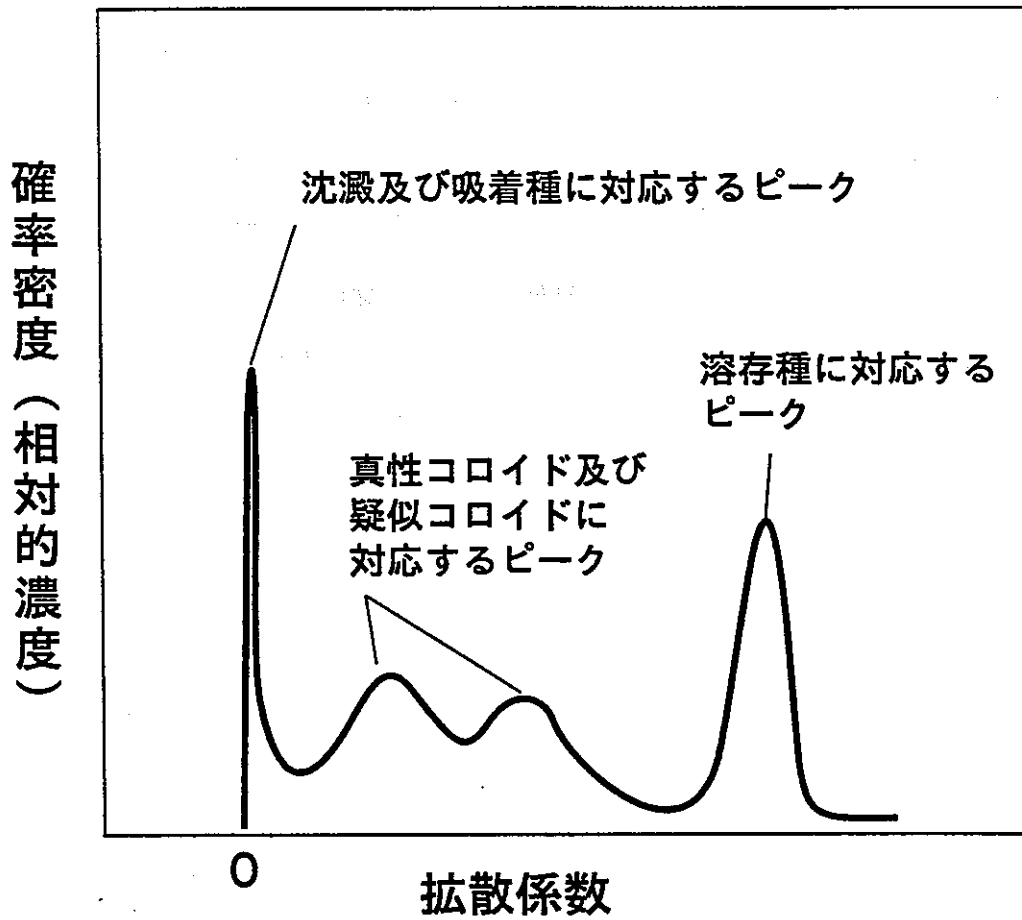


図1 複数の移行形態の分布形としての表現 (概念図)

$$\begin{aligned} \text{但し、 } C &= \int c(x, t, D) dD && \text{(全濃度)} \\ \alpha &= \frac{\int D c(x, t, D) dD}{C} && \text{(広義拡散関数)} \end{aligned}$$

広義拡散方程式は、それ自体では不定であり解は一意には定まらない。そこで、この自由度を利用して、広義拡散係数  $\alpha$  に各現象の個別の特性に対応した様々な形を入力すると多様な解が得られることとなる。この点が、本研究で開発した手法の最も特徴的な部分である。また、環境条件の時間・空間的な変動については、各現象についての  $\alpha$  の定義式に現れるパラメータを定数ではなく  $x, t$  の関数として考え、さらにこの関数形を各外部事象による影響パターンに基づき設定するという方法により取り扱うことができる。

上記のモデルでは、広義拡散係数の設定によっては、従来の評価モデルをも包含することができる。実際、

$$\begin{aligned} \alpha &= D_{s,0} / R && (C < c^* R), \\ &= \frac{D_{s,0} c^*}{C} && (C > c^* R), \end{aligned}$$

という定義を与えた場合には本手法の解は従来の評価モデルのそれと一致する。

本年度の研究では、上記の設定即ち従来モデルに対応した  $\alpha$  の定義を基本ケースとし、これに対する代替的なケースとして以下のモデルを表現する  $\alpha$  の設定を行った。

- ・真性コロイドモデル
- ・擬似コロイドモデル
- ・真性コロイド、擬似コロイド共存モデル

- ・水理条件の経時変化を考慮したモデル
- ・化学条件の(空間的に一様な)経時変化を考慮したモデル
- ・化学条件の(空間的に不均質な)経時変化を考慮したモデル

(例1)真性コロイドモデル(図2 参照)

$$\alpha = D_{s,oi} / R \quad (C < c^* R),$$

$$= \frac{D_{s,oi} c^* + K_{ic} D_{ic} (C - c^* R)}{C} \quad (C > c^* R),$$

(例2)擬似コロイドモデル(図3 参照)

$$\alpha = \frac{D_{s,oi} + K_{pc} (R - 1) D_{pc}}{R} \quad (C < c^* R),$$

$$= \frac{D_{s,oi} c^* + K_{pc} D_{pc} (R - 1) c^*}{C} \quad (C > c^* R),$$

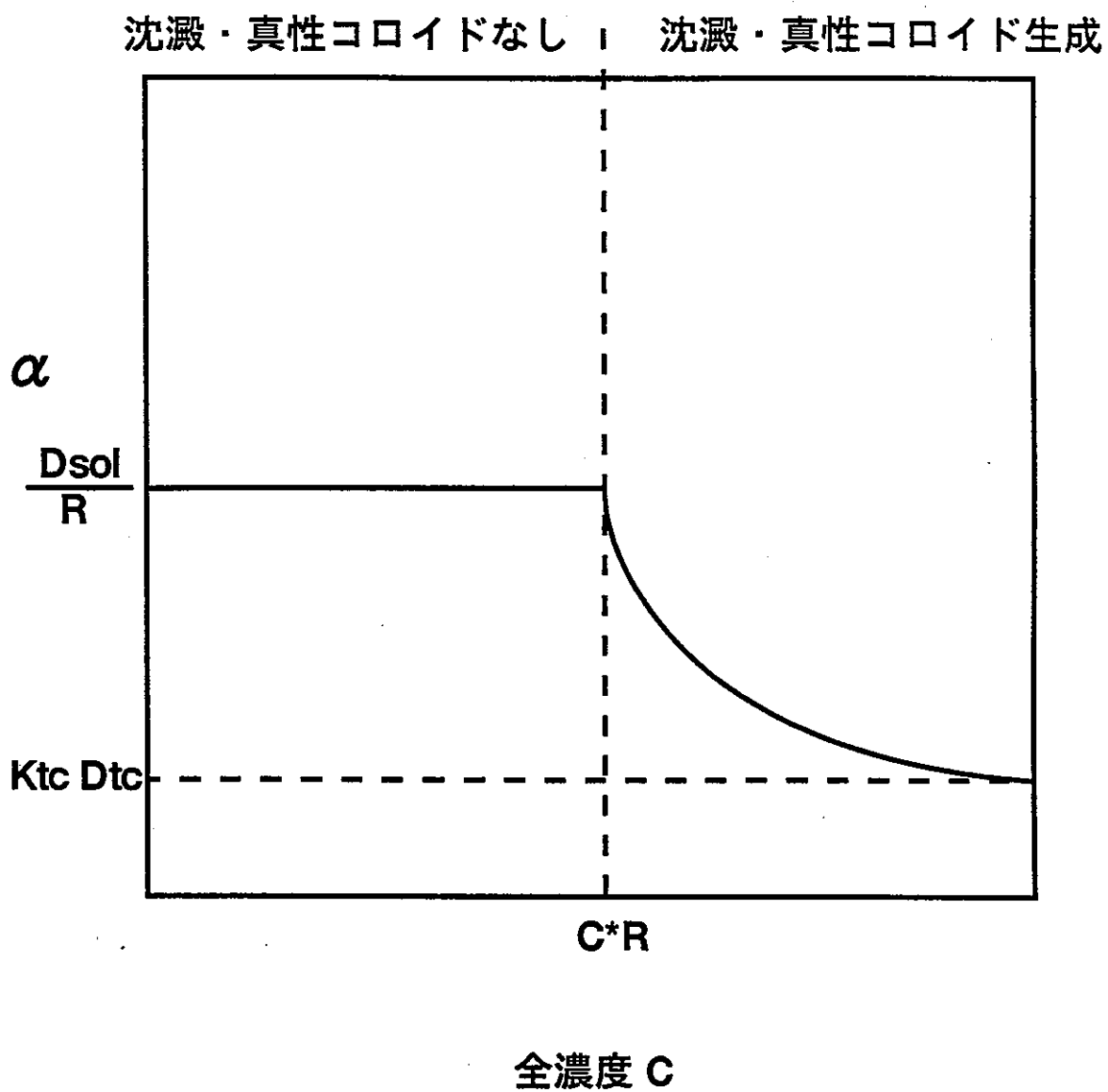
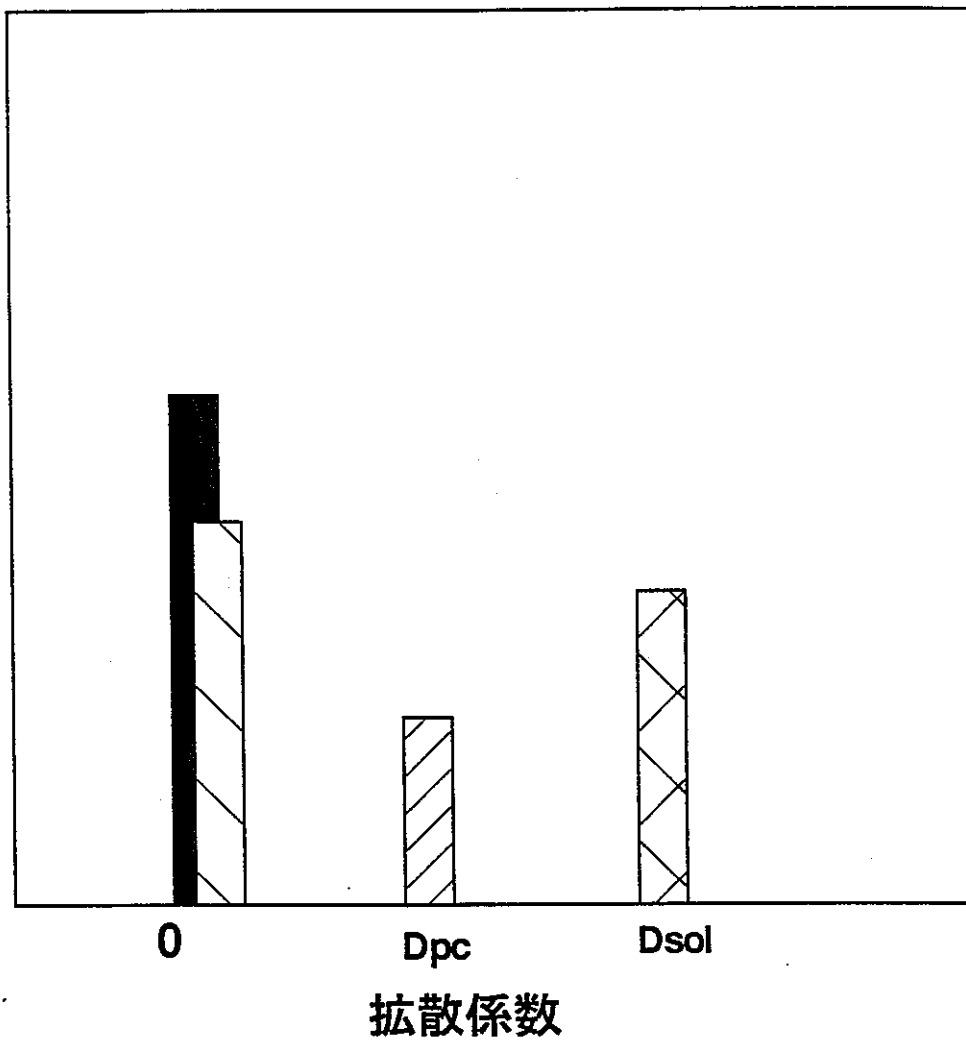


図2 全濃度 $C$ の関数としての $\alpha$ の表現  
(真性コロイドモデル)



確率密度(相対濃度)



- 沈澱物
- ▨ 吸着種
- ⊠ 溶存種
- ▧ 疑似コロイド

図3 疑似コロイドを考慮した場合の拡散係数の分布形

## 2. ソフトウェアの改良

上記の広義拡散方程式を用いた感度解析の手法を実用的なものとするために、昨年度開発した汎用DAB ソーバーSPADE 及びグラフィカルユーザーインターフェイスSAM GUI について改良を行った。主たる改良点を如何にまとめる。

### (1)SPADE

- ・初期条件セットの自動設定機能の追加
- ・リスタート機能の追加
- ・ビルトイン関数の拡充
- ・一次元及び二次元グリッド作成及び自動差分化機能の追加
- ・複数の計算を一括処理するためのユーティリティプログラムの作成

### (2)SAM GUI

- ・SPADE からの計算結果の自動転送機能の追加

## 3. 動的解析の試行

### (1)決定論的解析

1. に述べた種々の現象に対応するモデルのうち、

- ・従来の評価モデルに対応するもの
- ・擬似コロイドモデル
- ・真性コロイドモデル
- ・真性コロイド、擬似コロイド共存モデル
- ・水理条件の時間変化を考慮したモデル
- ・化学条件の不均質性と時間変化を考慮したモデル

について、Tc-99 を対象としてSPADE を用いた合計400 ケースの解析を行った。結果の一例を図4 ～図8 に示す。

これらの計算ケースの中では、真性コロイドモデルの感度が最も大きく、真性コロイドの拡散係数が極めて小さい場合でも基本ケースからの放出率の増加は顕著であることがわかった。また、化学条件の変化については、結果への感度は大きいものの保守的な条件を用いた定常条件モデルとピーク値は変わらなかった。

## (2)統計的感度解析

本手法では、通常の感度解析において入力データ値の統計的サンプリングを行うのと同様に、広義拡散係数  $\alpha$  の関数形を統計的にサンプリング（より厳密には、フーリエ級数近似した場合の係数のサンプリング）することにより統計的な感度解析を行うことが出来る。基本ケースの  $\alpha$  に徐々に統計的な摂動を加えた場合の  $\alpha$  の変化を図9 に、これと対応した核種放出率の変化の算出例を図10に示す。

## (3)二つの手法の併用

決定論的な手法は物理的な意味が明確であるのに対して、統計的な手法は現象としての解釈は難しいという短所がある。他方、統計的な解析では少なくとも原理的には可能な  $\alpha$  のパターンの網羅できるのに対して、決定論的な手法では従来の知見に対応して網羅性に限界があるという短所がある。このことから、これら二つの手法を相互補完的に用いることが望ましい。このような例として、以下を行った。

まず、統計的解析結果から、人工バリア外側に核種が一旦たまり、次に、化学条件の変化に伴いこれが一気に放出される場合のピークの出現可能性が指摘された。次にその物理的な解釈として、鉄製支保の消費や周囲の化学条件の時間的な変化により、ゆるみ域中の溶解度が一旦人工バリア内部よりも低くなり一定時間後に元の値に復帰するという現象が考えられる。この様な想定のもとに行った決定論的な解析の結果を

図11に示す。過渡期のピークは二つの溶解度の値を定常的に用いた解析では見られなかったものである。

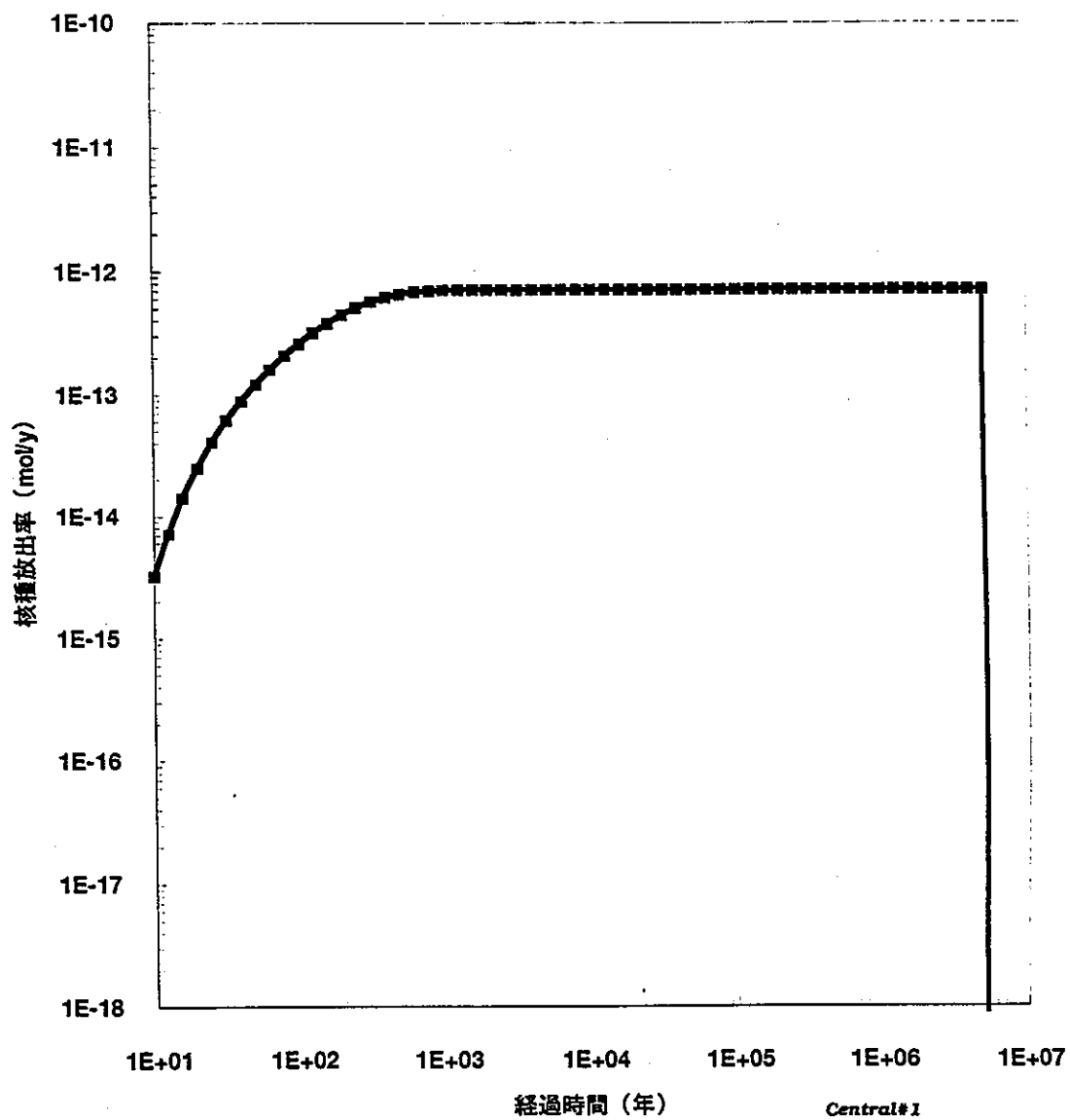


図4 標準ケースにおける核種放出率の経時変化

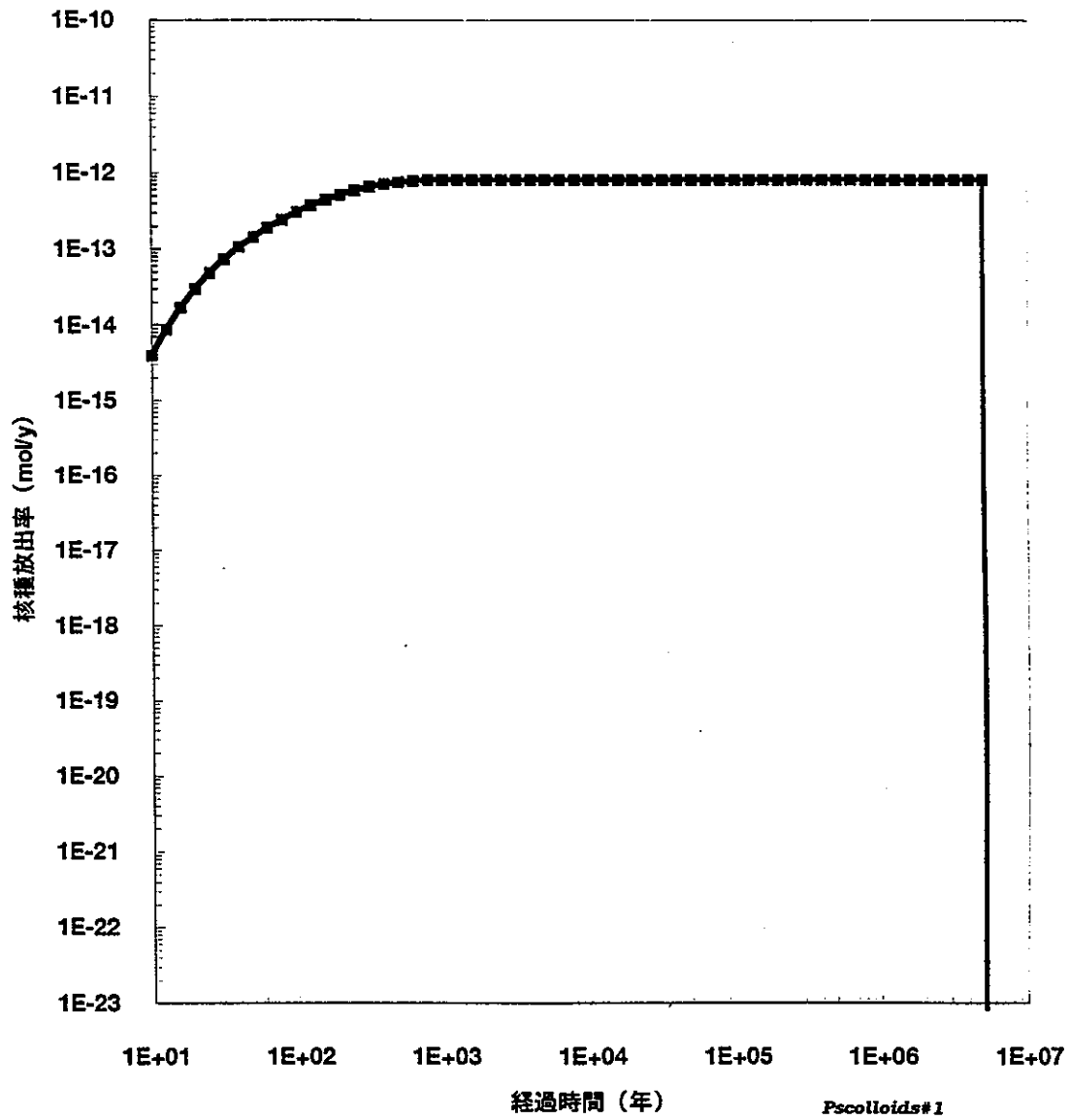


図5 疑似コロイドモデルによる核種放出率算出例  
( $R=2.8$ )

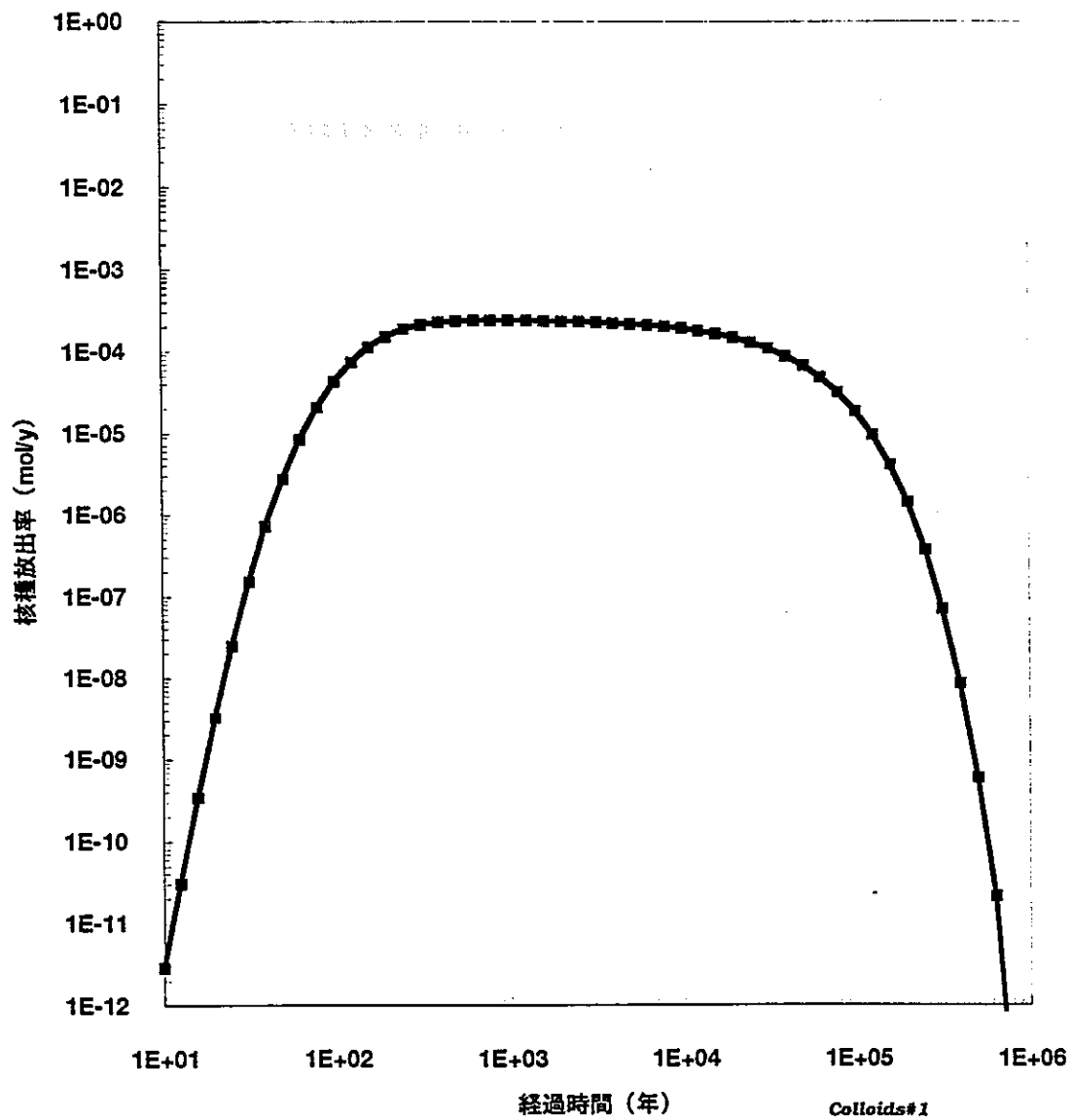


図6 真性コロイドモデルによる核種放出率算出例

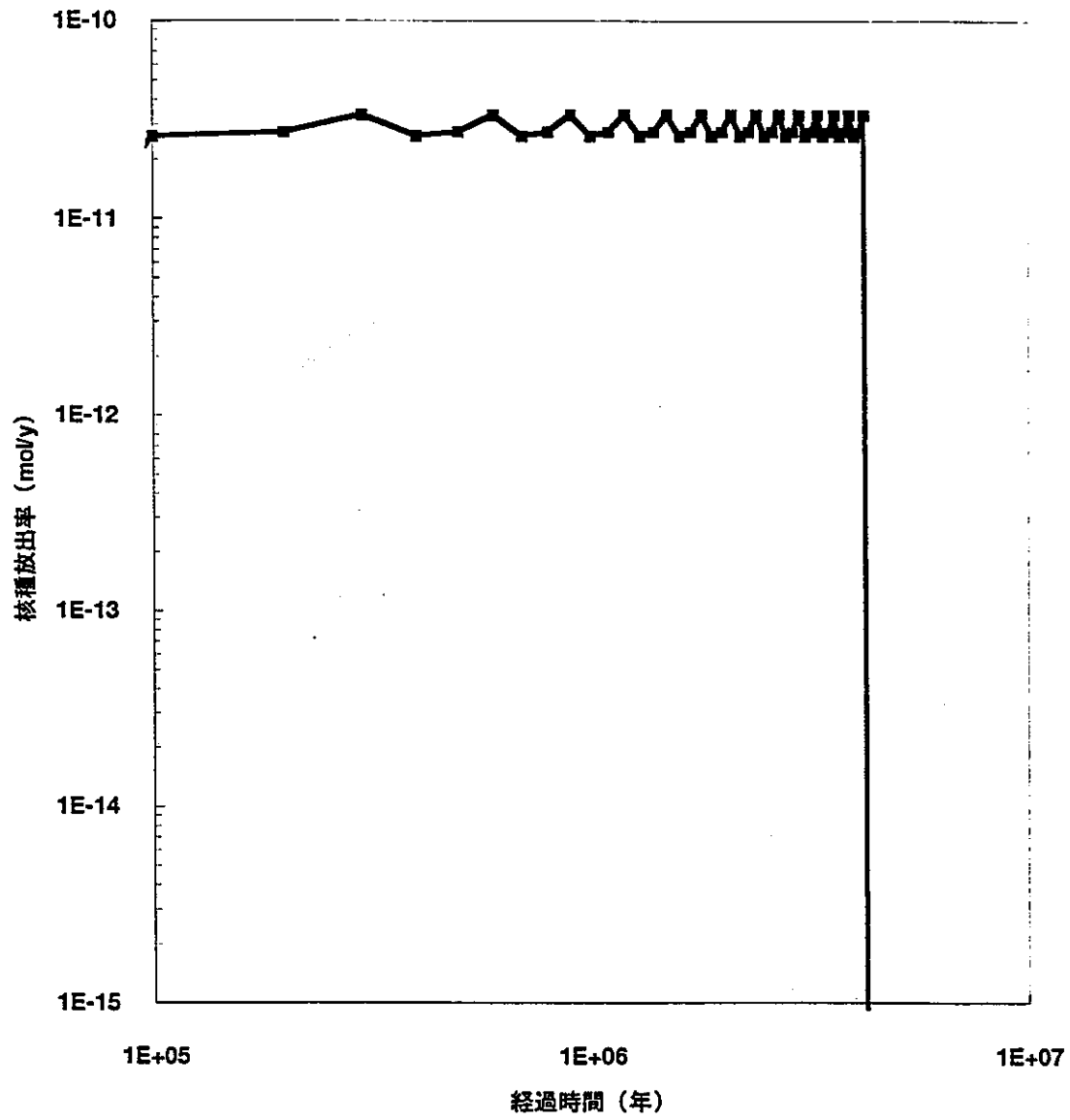


図7 経時的な水理条件変化モデルによる核種放出率算出例  
 ( $q_{w1}=10^4$ )



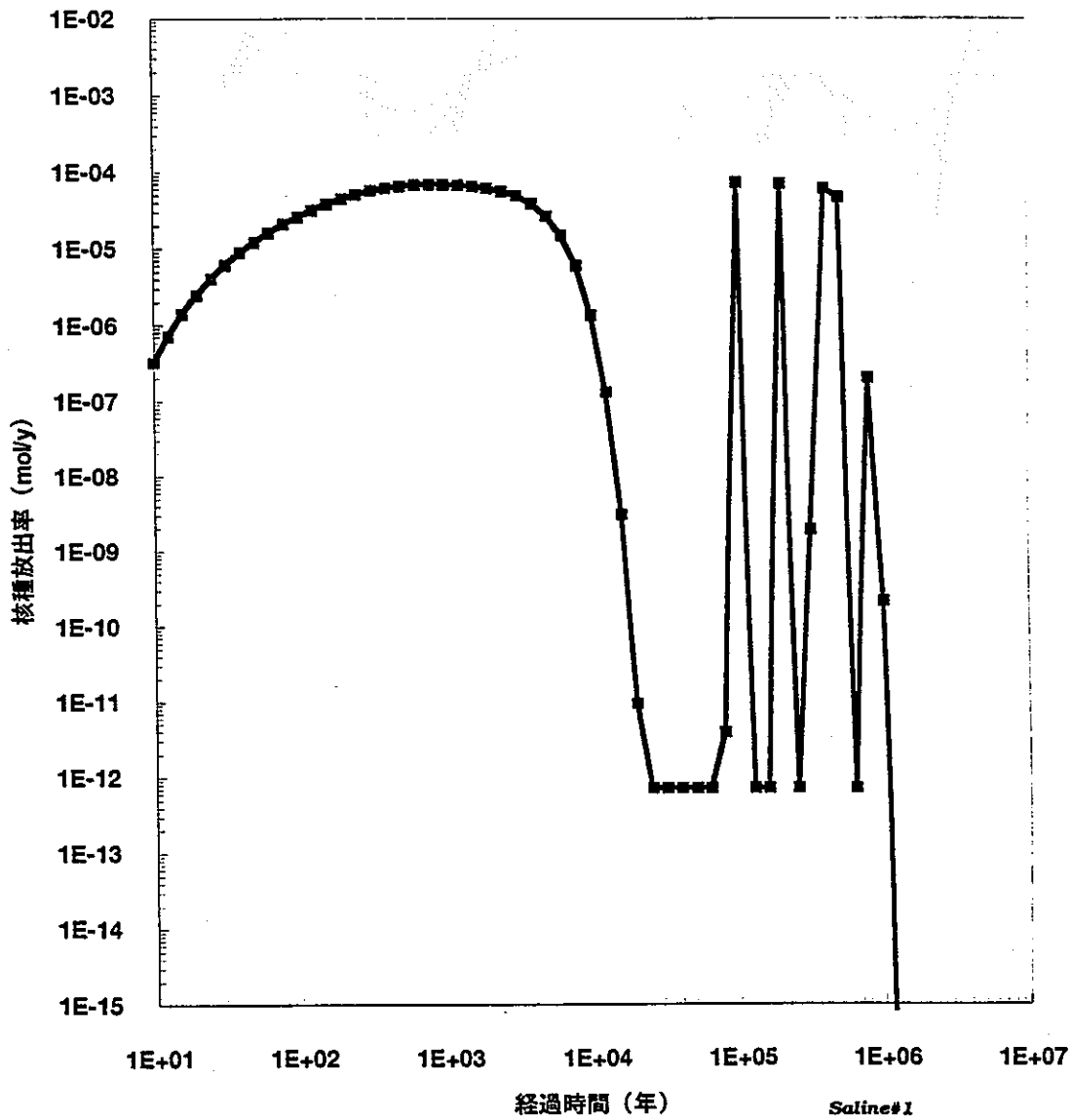


図 8 経時的化学条件変化モデルによる核種放出率算出例  
( $q_{w1}=10^4$ )

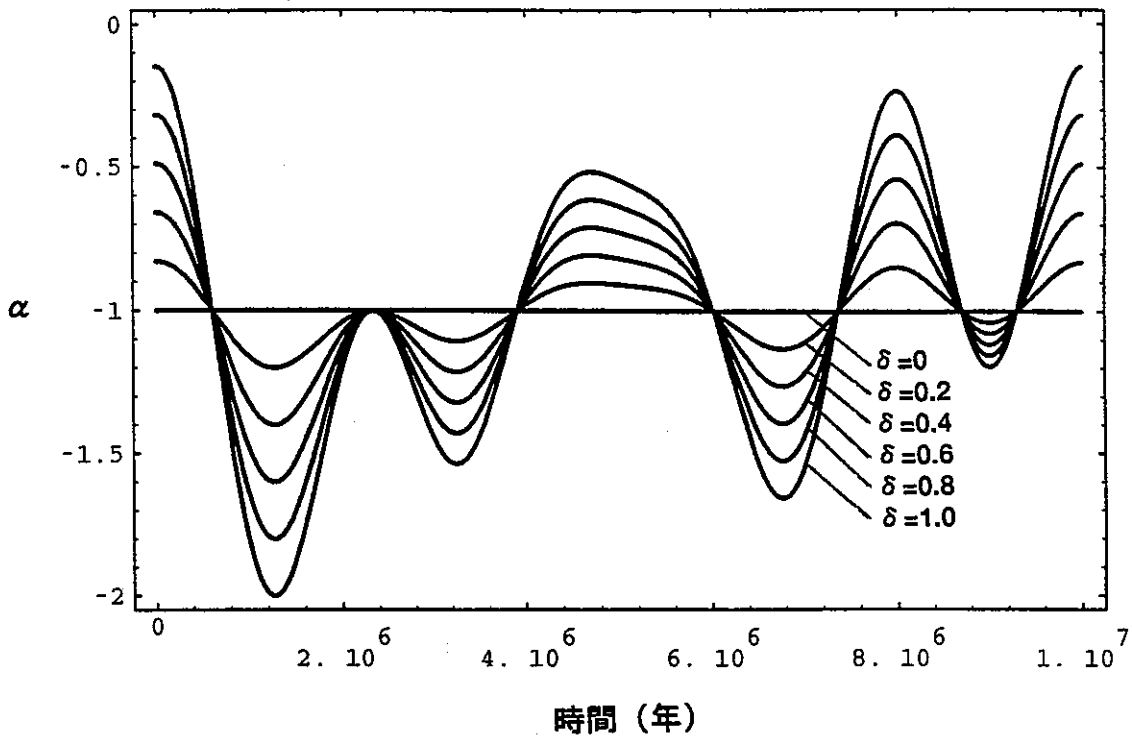


図9  $\delta$ を種々に変えた場合 $\alpha$ の例  
(ベントナイト最外例)

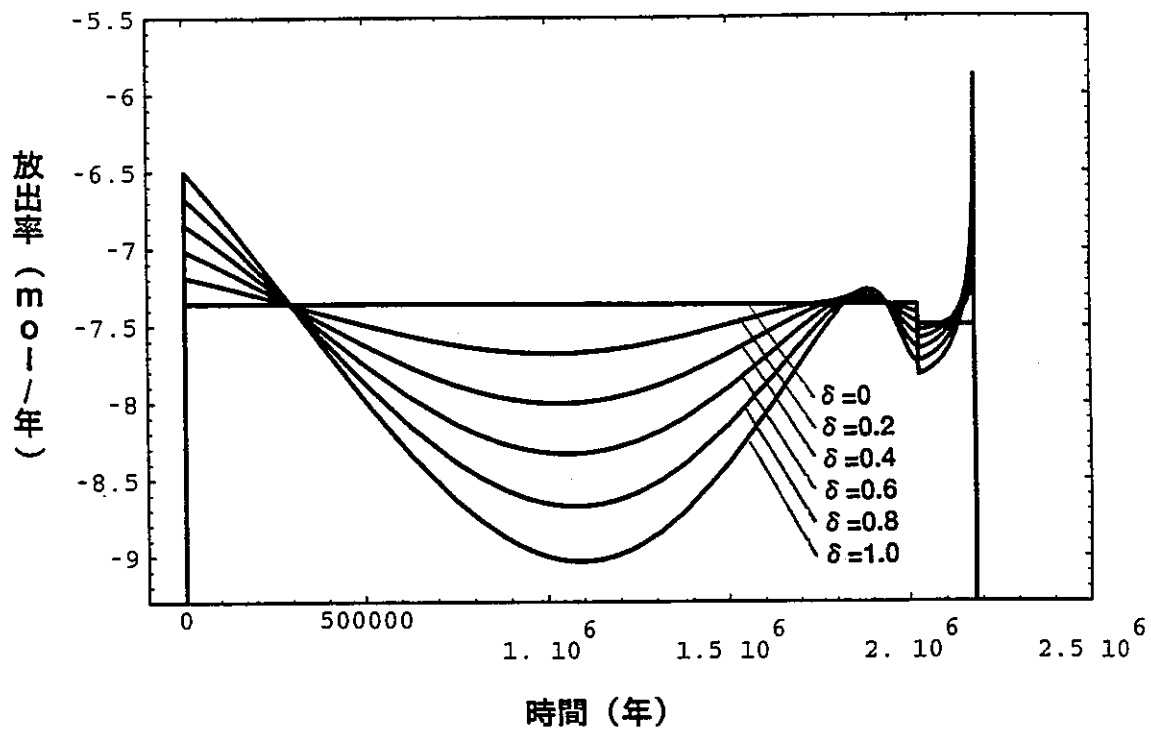


図10 統計的感度解析の結果

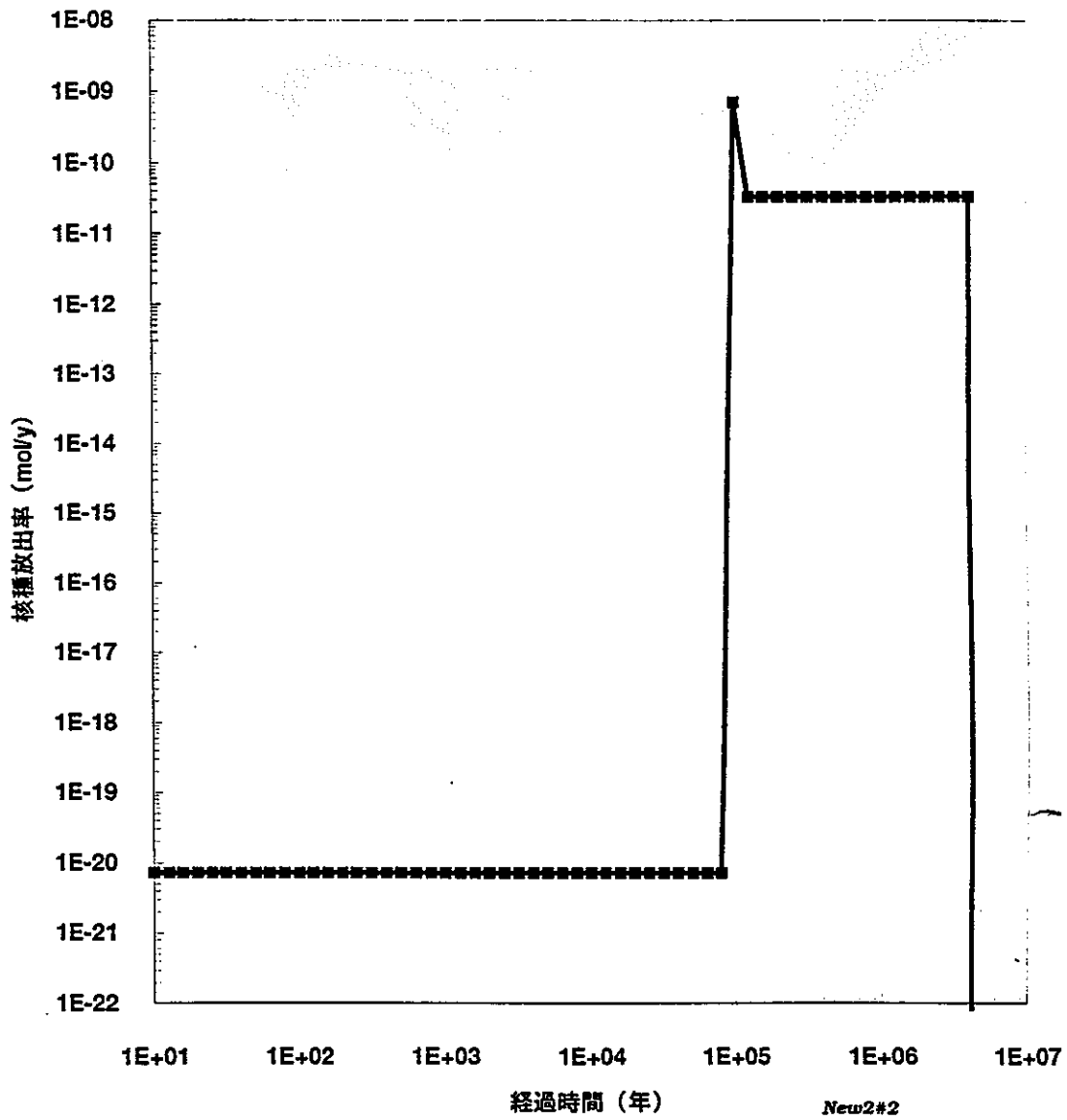


図11 ゆるみ域内地下水流量が大きい（標準ケースの $10^3$ 倍）場合の核種放出率

#### 4. 今後の課題

(1)FEPsリストの拡充と個々の現象についてのモデル化オプションのより詳細な整理

(2)(1)に基づく種々の代替的なモデルの作成

(3)崩壊連鎖を含めH3対象核種を包括した感度解析を実施し、各現象の重要度を分類する

(4)(3)を効率的に行うためのSPADE フロントエンドの改良