



高レベル放射性廃棄物の
地層処分研究開発特集

地層処分研究

2. 性能評価研究

2-4 全体システム性能評価研究

東海事業所 環境技術開発部
環境技術開発推進本部

資料番号: 85-11

Research on Geological Disposal

2. Performance Assessment

2-4 Performance Assessment and System Integration

(Waste Technology Development Division, Tokai Works,
Radioactive Waste Management Project)

性能評価研究は、ガラス固化体から溶出した放射性物質が地下水を介して人間の生活圏へいたるという過程（地下水シナリオ）に基づいて行われている。地下水シナリオに基づく多重バリアシステムの性能評価研究では、広域地下水流動と地下水の地球化学的特性、人工バリア近傍における熱、応力、水理と地下水の地球化学的特性の変遷、オーバーパックの腐食挙動とガラス固化体からの放射性物質の溶解速度および溶解度、放射性物質の人工バリア中の移行ならびに天然バリア中の移行について解析を実施し、人工バリアおよび天然バリアの例示的な性能評価を行った。その結果、地質環境条件の変動幅を考慮した例示的な解析により、人工バリアおよび処分施設を適切に設計し施工すれば、安全確保のための性能を長期的に保持し得ることが明らかになった。

また、性能評価研究をより高度化・詳細化していくためには、処分環境で発生すると想定される現象の相互関係を考慮できる連成解析システムを開発する必要がある。現在、これまでに実施してきた、(1)重要な現象の抽出、(2)現象の相互関係の整理、(3)融通性、拡張性に優れ、連成のアルゴリズム以外にデータ処理技術にも重点をおいた連成解析用計算支援システムの基本概念の検討に基づき、そのシステムの機能を具体化するためのプロトタイプシステムの開発を行っている。

1. はじめに

これまでに述べた種々の研究開発の成果を統合し、「2-1 シナリオ解析」において示された地下水シナリオの基本ケースに対する地層処分システムの全体評価について説明する。なお、評価の詳細については、「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—」¹⁾に記載されている。

さらに、種々の連成現象を考慮した評価を行うためのシステム開発を目的として行っている全体システム性能評価の妥当性に関する研究について説明する。

2. 地層処分システムの全体性能の解析

2.1 多重バリアシステム性能評価のためのモデル化と核種移行解析例

(1) 地下水シナリオに対する解析モデルの構成と解析の流れ

地下水シナリオの基本ケースに対する多重バリアシステムの性能の解析は、人工バリアが設置される地質環境の条件を幅広く考慮することを念頭におき、システム全体の性能を評価する一般的な枠組みを構築することにより進めることとした。このため、地質環境条件として深部地下水の水理と水質および人工バリア内の主な現象をモデル化し、地下水の浸入と移動の経路に沿って現象を解析し、多重バリアシステムの性能を解析することとした。地下水シナリオの基本ケース全体の性能を解析するためのモデル体系図は、すでに「2-1 シナリオ解析」の図6に示している。また、ここでの検討の対象とした人工バリアの概念図を図1に示す。

地質環境条件については、性能評価の観点から重要である水理および地下水の化学的特性についてモデル化を実施し、これらのモデルに基づいて、動水勾配および地下水の化学的性質が導出された。これらの特性は、ニアフィールドの水理、および人工バ

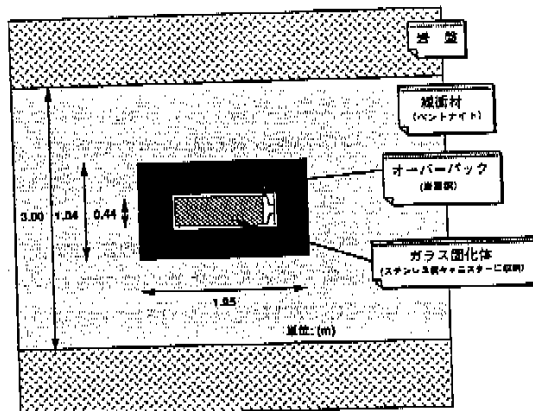


図1 人工バリアの概念図

リア内の地下水の化学的特性の解析、ならびに天然バリア中の核種移行の解析のための境界条件として与えるようにした。

このような境界条件のもとで、ニアフィールドにおける水理、熱、応力、地下水の化学等について解析して、ニアフィールドの環境が把握できるようにするとともに、そのような環境下でのオーバーバックの腐食挙動と固化体からの核種の溶出速度および溶解度の評価が行えるようにした。

次に、この結果を用いて人工バリア中の核種移行の解析や人工バリアからの核種の放出率が計算できるようにした。さらに、人工バリアからの核種の放出率と人工バリア周辺の水理および地球化学的な境界条件を用いて、天然バリア中の核種移行解析を、核種の支配的な移行経路の観点から分類された2つの媒体（多孔質媒体、亀裂性媒体）に対して実施できるようにした。

このような、一連の解析を通じて広範囲な水理条件、および地下水の地球化学的特性に対して、各バリア個別のあるいはシステム全体としての性能分析が可能となるとともに、その結果に基づき、今後必要な研究項目や研究への指針を導出することができる。

以下に、ここで述べた解析の流れにしたがって、モデル化の考え方と解析例を紹介する。

(2) 水理学的モデルと水理条件の導出

解析の流れの中で水理条件として必要な情報は、地下深部での地下水流速・流量に関するものである。しかし、それを導出するために必要な地下深部での水理パラメータ、特に透水係数に関して十分な情報が得られていない現状なので、水理解析から直接的に地下水流速・流量を導出することは避け、地形的

な要素に強く依存する値である動水勾配をモデル解析により導出し、透水係数を文献調査結果や原位置試験データ等を参考に、目的に応じてパラメータとして用いて解析することとした。

動水勾配の解析は、動水勾配を評価するのに必要な日本の地形情報および透水係数等の主要パラメータを整理し、これらを組み合わせた仮想的な二次元水理地質モデルを用いて地下水流動解析を実施するもので、動水勾配の範囲を保守的に把握することを目的としたものである。解析において地下水レベルは、常に地表面に沿って一定と仮定し、境界条件、断層等の存在による透水係数の分布の影響等をパラメトリックに検討した。その結果、地下深部の動水勾配の範囲として、0.01～0.6という値が導出された。

これらの値を基に、ニアフィールドにおける水理解析を行った結果、緩衝材中のベクレ数は 10^{-3} ～ 10^{-4} 程度であり、緩衝材中の物質移動は外側の水理条件によらず、拡散モデルで扱いうることが示された。

現実的な地形・地質を考慮した解析は、中部地域を例とした三次元広域地下水流動解析の例²⁾があり、より現実的な動水勾配の分布の把握がなされている。

それによると、飽和／不飽和地下水流動解析を行った結果、地下深部の動水勾配は、大部分が0.04以下に分布することが示されている。

本項のより詳細な内容は、「2-3 ファーフィールド研究」に記載されている。

(3) 深部地下水の地球化学的特性のモデル的検討

地球化学的条件については、深部地下水に関する分析例が限られていることや幅広い日本の地質環境を考慮した解析を行う必要があることから、地下水の水質形成に関与する地球化学プロセスについてモデル化を行い、性能評価上重要な深部地下水の化学的性状に関し、その基本的性質を把握するというアプローチをとった。すなわち、地球化学コードを用いた平衡論に基づく解析によって、pH、酸化還元電位(Eh)、イオン強度等を計算し、深部地下水を降水系高pH型(FRHP)、降水系低pH型(FRLP)、海水系高pH型(SRHP)、海水系低pH型(SRLP)の4種類の還元性地下水モデルに分類したうえ、それらの4種類のモデル地下水を、ニアフィールドにおける地下水の地球化学的特性および天然バリア中の核種挙動を解析するうえでの基本的条件として用いた。

深部地下水のモデル化の詳細については、「2-3 ファーフィールド研究」に記載されている。

(4) ニアフィールドの熱的および構造力学的検討

ニアフィールドの熱的および構造力学的特性を比

較的簡便なモデルにより概略的に評価し、以下の結果が得られた。

① 熱的条件の検討

ニアフィールドの熱解析を、通常の熱伝導モデルに基づき三次元有限要素法を用いて実施した結果^{3),4)}、緩衝材中の最高温度は埋設後20~30年以内にピークを迎え、数百年後には初期地温との差が約10℃のところまで下降し、さらに初期地温に近づくことがわかった。これにより、1000年でオーバーバックが核種閉じ込め機能を喪失しても、熱的影響は評価上無視できる。

② 人工バリアの冠水挙動およびそれに伴い発生する応力場の解析

冠水挙動の解析では、緩衝材への地下水の浸透は水分拡散モデルにより取り扱えるという仮定の基に計算を行った。その結果、緩衝材が地下水で飽和するまでの期間はおよそ100~200年程度であるという結果が得られた⁴⁾。これによりニアフィールド水理および核種移行については、飽和状態で解析できる。

ニアフィールドの応力場を規定する主要な要因の1つは、冠水に伴い発生する緩衝材（ベントナイト）の膨潤圧である。簡便な計算の結果によると、緩衝材中の最大主応力は冠水開始から20~30年後にピークに達し100年以降で定常に達する⁴⁾。埋設後1000年では、ニアフィールドの応力場は定常状態として取り扱うことができる。

③ 緩衝材中のオーバーバック変位の解析

オーバーバックの変位は、オーバーバックの重力による緩衝材の圧密および緩衝材のクリープ変形について評価し、現状で適用可能なコードを使用し連続体モデルとして解析を行った。その結果、算出された変位は、性能解析上ほとんど影響のない程度の値であった⁵⁾。

④ オーバーバックの腐食生成物による応力の検討

炭素鋼オーバーバックの腐食生成物が与える力学的影響は、腐食生成物の真密度がもともとの炭素鋼の半分近いと推定されることから、オーバーバックの体積がその約2倍の体積の腐食生成物と置き換わることに伴う応力の発生である。有限要素法による汎用弾塑性コードを用いた解析によると緩衝材の厚みを十分にとれば、発生する応力の周辺岩盤への影響は緩衝されるという結果を得ている⁶⁾。

上記③、④より、人工バリアの幾何学的な体系に経時変化がないものとして、核種移行解析を行うこととした。

(5) 人工バリアシステムによる地下水の化学的変遷の評価

人工バリア内に浸入した地下水の化学的性質は、人工バリアの構成要素と反応して、変化することが考えられる。次にモデル設定した4つの地下水と人工バリアとの反応による、地下水の化学的変遷過程について検討した^{7),8)}。

ニアフィールドにおける地下水組成の変化は、まず、地下施設の掘削・埋め戻しに伴い空気中から持ち込まれる O_2 や CO_2 ガスにより、自然の地下水のpH、Eh、炭酸イオン濃度(HCO_3^-)等が変化し、次いで、ベントナイト中の随伴鉱物の溶解やモンモリロナイトのイオン交換によりpH、イオン濃度がさらにオーバーバックの腐食生成物との反応により、Ehが変化するものとしてモデル化した。なお、ベントナイト/水反応については「2-2 ニアフィールド研究」の「(2)ベントナイトの化学的緩衝性および核種との相互作用に関する研究」に示すように、Wannerのモデルと試験結果とに良い相関が得られている。

このようなモデルに基づき(3)で設定した4種類のモデル地下水に対する人工バリア中での地下水の化学的変遷を地球化学コード(PHREEQE)により解析した結果を図2に示す。

これにより、ガラス固化体表面に到達する地下水組成は、希薄還元地下水の場合、pHは約8~10、peは約-7~-5、濃厚還元地下水の場合、pH

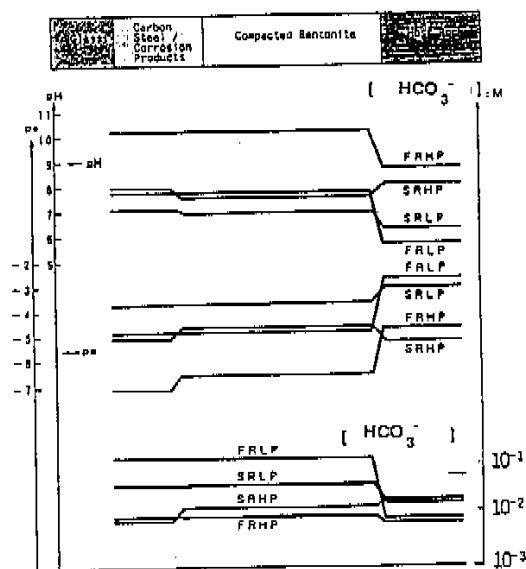


図2 ニアフィールドにおける地下水の化学的変遷の評価例

は約7~8、peは約-5~-4の領域にそれぞれ緩衝されることがわかる。

(6) ガラス固化体からの核種の溶解モデルと溶解度の評価

人工バリア中の核種移行解析における、緩衝材内側の境界条件を評価するためにガラス固化体からの元素の溶出を、各元素の溶解度による溶出制限の考え方に基づきモデル化するとともに、人工バリアによる化学的緩衝作用を考慮した日本の地下水組成範囲の中で性能評価上重要な元素の溶解度を計算した⁸⁾。

モデル化に当たっての基本的な考え方は、以下のようものである(「2-2 ニアフィールド研究」の「(3)ガラス固化体からの核種溶解に関する研究」参照)。

① 溶解度が比較的大きい可溶性元素(Cs等)の溶解は、ガラスの主要成分である $\text{SiO}_2(\text{am})$ が液相で、その飽和濃度に達するまでは $\text{SiO}_2(\text{am})$ の溶解に律速され、その溶解速度は一次反応速度則にほぼ従う。

② ガラス固化体表面近傍のSi成分濃度が飽和に達した後も、可溶性元素の溶解はある一定の速度で進行する。

③ 難溶性元素(アクチニド等)は、ガラス母相と水との反応により、ガラス表面に酸化物、水酸化物、炭酸塩等からなる固相を形成し、それらの溶解度と緩衝材外側へ向かっての拡散が元素の溶出速度を支配する。

溶解度の評価は、人工バリアとの反応を経たモデル地下水に対して地球化学コード(PHREEQE)とNEA-TDB等の国際的なデータベースに基づき編集した熱力学データを用いて行った。まず、Eh-pH線図を作成した後、(3)や(5)で評価した地下水環境下での安定相を抽出し、各元素に対して酸化物と水酸化物を中心とする溶解度制限固相を設定した。表1に人工バリアで緩衝された後の各地下水系に対する溶解度の計算例を示した。

(7) 炭素鋼オーバーパックの腐食挙動モデル

処分場閉鎖直後は、緩衝材(圧縮ベントナイト)の空隙中に取り込まれた大気中の酸素の影響で、オーバーパックの周囲は酸化性の環境と考えられる。しかし、ベントナイト中に存在する黄鉄鉱等の不純物による酸素の消費や圧縮ベントナイト中の酸素の拡散係数が小さいことから、オーバーパック近傍の酸素が比較的短期間に消費された後は、オーバーパックの周囲は還元性の環境になると考えられる。その際には、オーバーパックは、水の還元による水素発生型の腐食に支配され、均一腐食形態をとると考えられる。

表1 算出した酸化物系の溶解度 [mol/l]

元素	溶解度制限固相	降水系高pH型地下水	降水系低pH型地下水	海水系高pH型地下水	海水系低pH型地下水
Zr	$\text{Zr}(\text{OH})_4$	3.2×10^{-10} $\text{Zr}(\text{OH})_5^-$	1.8×10^{-10} $\text{Zr}(\text{OH})_5^-$	1.9×10^{-10} $\text{Zr}(\text{OH})_5^-$	3.4×10^{-11} $\text{Zr}(\text{OH})_5^-$
Ta	Ta_2O_5	8.0×10^{-24} $\text{TaO}(\text{OH})_2$	7.9×10^{-24} $\text{TaO}(\text{OH})_2$	7.1×10^{-24} $\text{TaO}(\text{OH})_2$	7.3×10^{-24} $\text{TaO}(\text{OH})_2$
Sn	SnO_2	2.4×10^{-8} $\text{Sn}(\text{OH})_4$	2.4×10^{-8} $\text{Sn}(\text{OH})_4$	2.0×10^{-8} $\text{Sn}(\text{OH})_4$	2.2×10^{-8} $\text{Sn}(\text{OH})_4$
Th	ThO_2	2.5×10^{-10} $\text{Th}(\text{OH})_4$	2.6×10^{-10} $\text{Th}(\text{OH})_4$	2.1×10^{-10} $\text{Th}(\text{OH})_4$	2.3×10^{-10} $\text{Th}(\text{OH})_4$
U	$\text{UO}_2(\text{cr})$	3.9×10^{-10} $\text{U}(\text{OH})_4$	3.9×10^{-10} $\text{U}(\text{OH})_4$	3.3×10^{-10} $\text{U}(\text{OH})_4$	3.5×10^{-10} $\text{U}(\text{OH})_4$
Np	NpO_2	2.0×10^{-12} $\text{Np}(\text{OH})_4$	2.0×10^{-12} $\text{Np}(\text{OH})_4$	1.7×10^{-12} $\text{Np}(\text{OH})_4$	1.8×10^{-12} $\text{Np}(\text{OH})_4$
Pu	PuO_2	2.5×10^{-11} $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$	5.3×10^{-8} $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$	6.4×10^{-10} $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$ $\text{Pu}(\text{CO}_3)_3^{3-}$	2.8×10^{-7} $\text{Pu}(\text{CO}_3)_3^{3-}$ $\text{Pu}(\text{CO}_3)_4^{4-}$
Am	AmOHCO_3	6.3×10^{-9} $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$	3.1×10^{-7} $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$	6.3×10^{-8} $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$ AmCO_3 $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^{2-}$	1.0×10^{-7} AmCO_3 $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^{2-}$
Pd	PdO	1.3×10^{-9} $\text{Pd}(\text{OH})_2$	1.3×10^{-9} $\text{Pd}(\text{OH})_2$	1.2×10^{-9} $\text{Pd}(\text{OH})_2$	1.2×10^{-9} $\text{Pd}(\text{OH})_2$
Se	FeSe_2	8.0×10^{-7} HSe^-	6.0×10^{-9} HSe^-	7.6×10^{-9} HSe^-	6.9×10^{-10} HSe^-

* 酸化物系の溶解度制限固相は想定せず。

** 下段は支配的化率種を表す。

保守的な仮定に基づくオーバーパックの腐食モデルは、以下のとおりである。

① 酸素による腐食

ベントナイトの空隙中に取り込まれた酸素が全量腐食に寄与すると仮定し、不純物による酸素の消費は保守的に無視する。実験により、ベントナイト中の酸素は、吸着分も考慮すると空隙間体積から求めた酸素量から、酸素による平均腐食量が算出される。局部腐食を考慮した最大腐食深さについては、大気条件下のベントナイト共存下の炭素鋼浸漬試験結果等を極値統計解析により、オーバーパック1体あたりに外挿し、これを酸素による腐食の最大腐食深さとする。

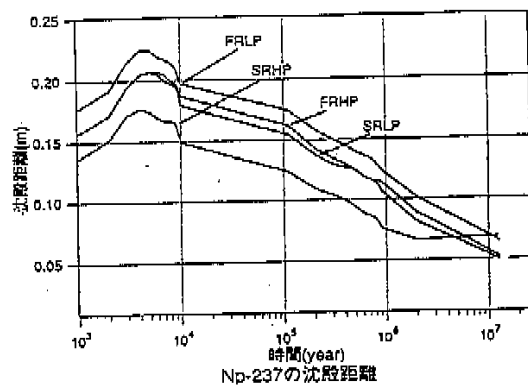
② 水の還元による腐食

水の還元による腐食では、不動態皮膜破壊型の局部腐食は起こらないと考えられ、これまでに実施した脱気水中および圧縮ベントナイト中の腐食試験でも局部腐食の発生は認められていない。したがって、試験で得られた平均腐食速度により評価する。

③ 硫化物による腐食

保守的な算定として、ベントナイト中の硫酸化合物が全量バクテリアにより還元され腐食に寄与すると想定し、拡散による移行を考慮してモデル化する。

①~③の腐食は、環境条件の変化とともにその寄与率も変わり、すべての腐食反応が同等に進行し得

図3 緩衝材の NpO_2 沈澱フロントの進展の評価例

るものではないが、仮に各腐食量を合計して最大侵食深さを評価すると、1,000年間でおよそ30mm程度の値となる⁹⁾。

以下の評価結果により、オーバーバックの健全性は1000年間維持されると設定した。

本項のより詳細な内容は、「2-2 ニアフィールド研究」の「(1)オーバーバックの腐食に関する研究」に記載されている。

(8) 人工バリア中の核種移行解析

ニアフィールドの地下水化学特性および水理条件等、これまで述べてきた環境条件に関する解析を踏まえ、想定した人工バリア内の核種挙動を把握し、システム性能を評価するためのモデル化と解析を行った⁸⁾。

核種移行モデルにおいて考慮されているプロセスは、拡散による物質移動、緩衝材に対する核種の吸/脱着、溶解・沈澱反応、および崩壊連鎖であり、一次元円筒座標系において定式化した（「2-2 ニアフィールド研究」の「(5)ニアフィールド性能評価モデルの開発」参照）。以下に解析例について紹介する。

ガラス固化体からの核種放出は、アクチニド等の難溶性元素については溶解度制限で、Cs等の易溶性元素については、一定の長期浸出速度を設定して内側境界条件としている。また、緩衝材周辺母岩界面における核種濃度は、保守的にゼロと設定した。

元素の溶解度は、(6)で評価した値を入力値として設定した。ベントナイトに対する分配係数は、NEA/SDS等を参考に文献調査を行い、地下水の化学的条件や元素の化学形態等を考慮して設定した。ベントナイト中の実効拡散係数は自由水中の拡散係数と実験的に求めた形状因子の積として与えた。

図3に緩衝材中に生成する NpO_2 の沈澱に関し、

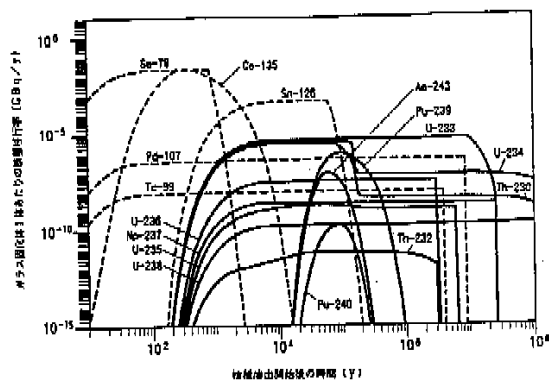


図4 人工バリアからの核種移行率の時間変化（降水系高pH型地下水/酸化物系溶解度制限固相の場合）

そのフロントの進展の解析例を4種類の地下水系に対して示した。親核種であるAm-241よりも、娘核種のNp-237の方が溶解度が小さいような場合には、緩衝材中に娘核種の沈澱を生じることになる。緩衝材外側への核種放出率の評価では、このような沈澱フロントの進展も考慮されている。

図4に、人工バリアからの核種放出率の解析例を示した。このような人工バリアからの核種放出の最大値は、想定した地下水化学的性質の範囲内で大きく変動しないことが認められている。

(9) 天然バリア中の核種移行解析

現段階における天然バリア中の核種移行解析の目的は、核種の移行遅延に関する地質媒体の基本的特性を考察するとともに、今後の調査研究や詳細な移行解析の方向性に対して見通しを得ることである。

そこでまず、日本に存在する岩体を念頭に置いて、核種の移行経路とそれに対応する移行メカニズムに着目し、地質媒体を多孔質媒体と亀裂性媒体とに分類し、簡便なモデルを用いて感度解析的な評価を実施した¹⁰⁾。

解析においては、媒体の移行遅延効果と各媒体特性および水理的条件等との関連を明らかにすることによって、天然バリアの基本的な性能を評価できるようパラメータの設定を行った。

図5に分子拡散が核種移行を支配する媒体における核種移行解析例を示した。この結果、 $\lambda \cdot R_d$ 値の大きい核種ほど、媒体の移行遅延効果はより大きく働き、この値が 10^{-8} を越える場合、人工バリア外側から10mの地質媒体中の評価地点の距離においても媒体の移行遅延効果が顕著になることがわかった。

(10) 簡単な線量評価による地層処分システム性能の概略的把握

人工バリア中の核種移行および天然バリア中の核

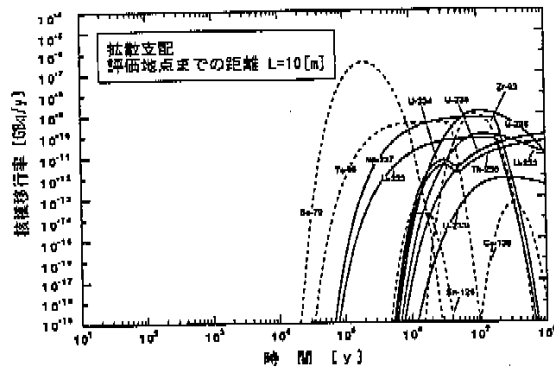


図5 多孔質媒体中の核種移行解析例
〔人工バリアからの核種移行率：降水系高pH型地下水、酸化物系溶解度制限固相〕

種移行の解析により得られた核種の移行率に基づいて簡単な線量評価を行い、多重バリアシステム全体の性能を安全性の観点から概略的に把握することを試みた。

線量の計算は、地質媒体中のある地点において核種を含む地下水が希釈されると考え、この希釈された地下水を人間が摂取すると仮定して行い、多孔質媒体、亀裂性媒体のそれぞれに対して線量当量率を求めた。計算に際しては、人工バリア外側から評価地点までの距離と、評価地点における希釈を考える際の水量をパラメータとした。評価地点における水量については、上水道利用される主要な水源として、深井戸および河川を考えてその範囲を $10^4 \sim 10^5$ (m^3/y) に設定した。

各地質媒体について、評価地点および水量をパラメータとして線量当量率評価を行った場合の最大値を求め、この値を示したものが図6である。この図から、評価地点が人工バリア外側から10mの位置であっても、地質媒体が充分な天然バリア性能を有する場合には、線量当量率は $1 mSv/y$ を下回っており、多重バリアシステムによって、処分場近傍にお

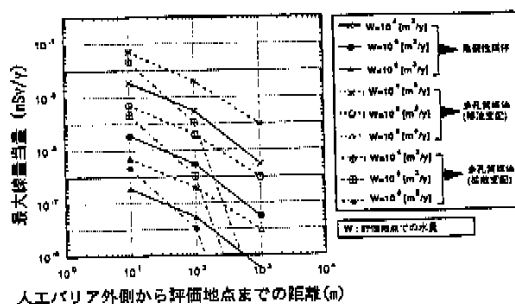


図6 地下水シナリオに関する線量評価の例

ける環境安全を確保しうることが示されている。

2.2 まとめ

日本の地質環境条件を幅広く想定したうえで、多重バリアシステムの性能評価を行うための一連のモデル化の考え方と解析結果を中心にして、これまでの性能評価研究の概要を紹介した。このようなシステム性能全体にわたる総合的な解析にいたるまでの検討を通して得られた知見は、以下のとおりである。

- ・地下深部の人工バリア周辺における地下水の流速や化学的性質等の地質環境条件が一般に想定される範囲のなかで変動しても、人工バリアの放射性核種の溶出・移動抑制機能は、大きく変動しない可能性がある。
- ・地層のもつ核種の移行抑制機能は、地層の空隙構造、水理、核種の吸着等に関するパラメータの組み合わせにより、その効果は異なるが、比較的短い移行距離においても核種の遅延・減衰が大きい条件も存在する可能性がある。

今後は、モデルの妥当性の検証や信頼性の高いデータの整備等を通じて、上述した知見をより確実にしていくことが課題と考えられる。

3. 全体システム性能評価の妥当性に関する系統的検討

上記2.において、地下水シナリオの基本ケースに対する全体システム性能の評価を例示的に説明したが、この評価の過程は、多くの研究領域の成果として得られた情報を一貫した論理体系に基づいて集約する非常に複雑な作業である。したがって、最終的に導出されたアウトプットの信頼性については種々の観点から保証できるように充分な注意を払っておく必要がある。このことは、性能評価という作業に対する一種の品質保証と考えることができる。このためには、まず性能評価を構成する具体的な作業要素が個々に充分吟味されていることが大前提である。たとえば、シナリオの妥当性に関しては「2-1シナリオ解析」において述べたような系統的なシナリオ解析の枠組みの中で、性能評価上重要な現象の見落としをなくしたり、不必要なシナリオをスクリーニングしたりすることによって専門家の判断を十分に活かしつつ合理的に進めることによって達成可能である。また、現象を表現するためのモデルについては実験との対比による検証作業によってその妥当性が検討される。これらについては、すでに本報の他の部分に述べられている研究開発の成果を眺めれば充分理解されよう。

このような個々の作業要素に関するそれぞれ独立

した保証と合わせて全体システムの性能評価の結果が妥当なものとして受け入れられるためには、さらに次のような総合的な視点から確認を行うことが必要となる。

- (1) シナリオに即して解析手順が正しく踏襲されているか

シナリオは、地層処分システム自体の長期的挙動について記述したものであり、性能評価の手順を明確にするものである。解析対象となる現象間の相互関係に基づいて解析順序や個々の境界条件が決定され、シナリオに沿って解析が進められる。一連の作用が間違いなくシナリオを表現する順序で行われたかの確認ができなければならない。

- (2) 個々の現象の解析に用いられるモデルは適切に設定され計算コード上に表現されているか

個々の現象はある概念モデルによって置き換えられ、数学的な定式化を経た後、適切なアルゴリズムの下に計算コードとして計算機上に展開されている。これらの手続きに関する保証を計算コードの検証・確認により示すとともに、その証拠を保持しておくことが必要である。

- (3) 解析に利用するデータセットは適切に設定され計算コードに入力されているか

モデルに含まれるパラメータや、初期条件・境界条件、さらに数値計算のアルゴリズムに付随するパラメータがデータセットとして正しく設定され、計算機にストアされていることが確認されなければならない。

- (4) 解析手順に即してある解析結果の出力が次の解析の入力として適切に受渡しされているか

解析はシナリオにしたがってシーケンシャルに進められるため、ある解析結果が次の解析に利用される。この際、先行する解析の結果が、直接次の解析の入力フォーマットになっていない場合や、種々の変換手続きを受ける場合も多い。たとえば、広域水理の解析結果から動水勾配の最大値が検索され、さらに保守的に丸められた後、ニアフィールドの水理解析の境界条件に用いられていること等がその一例である。このような個々の解析結果の受渡し手続きについても常に確認が行われ、間違いのないようにする必要がある。

- (5) 計算の誤差に伴う不確実性はどの程度か

計算コードの解析能力にしたがって計算誤差が発生し最終結果に影響を及ぼすことが想定される。地層処分の性能評価では取り扱う現象が多岐におよび、空間的規模や時間領域が広範にわたるため必要とされる精度のレベルも個々の解析に応じて異なると考えられ、誤差の問題は重要である。したがって、

それぞれの解析コードの能力を適切に把握し、計算結果に伴う誤差がどの程度であるかを明らかにして、最終的な不確実性を確認できるようにしておくことが必要である。この作業は、上記(2)を含め、幅広いパラメータ空間に対して体系的に行われる必要がある。

これらに加え、研究開発の進展に伴う新たなモデルの開発や改良、あるいはデータの更新、付加等を受けて、評価の枠組み自体が時間的に変化することをも考慮して全体システムの性能評価の結果を保証できるような仕組みを構築しておくことが重要である。

種々の作業が正しく行われたかどうかの確認は、基本的には性能評価の作業者の責任に負うところのものであるが、作業過程は複雑で複数の人間が関与し、また解析は何度も繰り返し大量に行われる。多くの作業は計算機と性能評価作業者との対話による方法で進められるため、評価者の人為的ミスを排除できるよう高度な情報処理機能を準備しておくことが有効であると考えられる。これによって、何が行われたか常にトレースできるようにする。地層処分の性能評価に対する品質を保証するため、このような情報管理の環境を開発することも重要な課題である。

以下では、全体システムの性能評価の妥当性を保証するための研究開発の例として高性能のワークステーションを核とした解析環境の整備と、地球化学計算で頻繁に使用されたコードPHREEQEに対して実施した計算コードの体系的な検証・確認に関して簡単に説明したい。

3.1 地層処分性能評価用解析システム

性能評価研究における構成要素は、図7に示す階層構造を有している。このため、性能評価結果の妥当性を保証するための情報管理システムを整備する

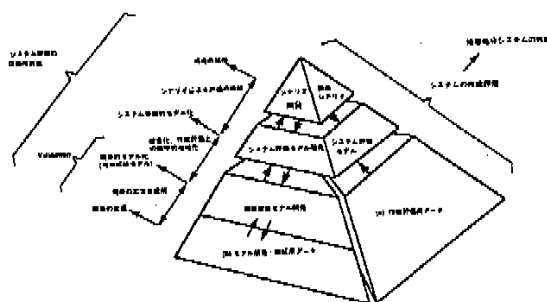


図7 性能評価体系の階層構造

にあたっては、このような構造を考慮しておく必要がある。

地層処分システムの性能評価において考慮すべき現象は、熱、水理、力学、腐食、地球化学、物質移動等の多岐にわたり、かつ複合的／階層的な関連性を有している。これらの現象や現象間の相互関係についての理解は、性能評価に対する科学的根拠を保証していく上で重要である。このため、個々の現象あるいはいくつかの連成現象を現象に即して表現することのできる現象解析モデル(Research Model)の開発を必要とする。

同時に、地層処分システム全体の性能を評価するためには、多様な現象の組合せを包括的に評価できるシステム評価モデル(Assessment Model)の開発を必要とする。

したがって、地層処分システムの総合的な評価のため、地下水シナリオに対応して、現象解析モデルや試験データ等を整備・統合し、これらを体系的に管理できる解析システムを開発することはきわめて有益である。具体的には、既存の現象モデルを中心に試験データ等を統合した連成解析用の計算支援システムの開発、ならびに解析作業を効率的に実施するためのユーザー・インターフェースの開発である。

上記の解析システムを用いて、性能評価上の関心高い支配的な現象を整理し、安全評価における技術的な担保を確保しながら、現象モデルを簡素化・統合化することによって、信頼性の高いシステム評価モデルの開発を保證することができると考えられる。

(1) 統合解析システム開発の基本的な考え方

現象解析モデルの体系的な管理と統合化を進め、最終的にシステム評価モデルによる性能評価解析を行うための計算機支援の統合解析システムを開発する際の基本的な考え方は次に示すとおりである。

- ① シナリオに即して解析手順が正しく踏襲されているかの確認のために、地層処分システムの性能を評価する上で考えるべき現象を、地下水シナリオに基づいて整理する。
- ② 個々の現象の解析に用いられるモデルが適切に設定されコード上に表現されているかの確認のために、評価すべき現象に関する現象解析モデル／コードを調査し、システム評価モデルの統合化に必要なものを選択するとともに、現象を定量化する際の確信度について、システム全体を見通して必要なレベルを検討し、現象解析モデルを整備する。
- ③ 解析に使用するデータセットが適切に設定され計算コード入力されているかの確認のために、個々のコードが必要とするデータ、モデル間での

データの共有、ならびにデータの評価作業における階層性等を明らかにする。このため、対象とする現象を評価するモデル／コードに基づいてデータについても整理する。

- ④ 解析手順に即してある解析結果の出力が次の解析の入力として適切に受渡しされているかの確認のために、地下水シナリオに基づいて、現象解析モデルを連成することのできる総合的なニアフィールド連成解析システムを開発する。この連成解析システムにおける現象間の連成については、個々の現象に対する理解に基づいて、オブジェクト指向データベース管理システムを媒介とするコード間のカップリングシステムを開発し、カップリングの適切なモデル化、計算アルゴリズム等のカップリング技術に関する検討を行う。また、連成解析システムには、カップリング技術を試行し、段階的に能力を拡張する方針とする。各段階で現象解析モデルや連成解析に対する理解を深め、システム評価モデルを構築するための検討を行う。

- ⑤ 計算の誤差に伴う不確実性を低減するために、選択されたモデルについて、性能評価に必要な水準に達していることを検証・確認するとともに、連成解析システムを用いて、現象ごとに現象解析モデルのベンチマークや複合現象に対するパラメータ検討、検証・確認を行う。これらの結果に基づき、現象解析モデルや連成モデルの高度化を検討し、総合的な評価モデルの開発を行う。

(2) 統合解析システムの概要

本解析システムにおいては、現象解析コード間の連成制御のアルゴリズムに加えて、データ処理技術にも重点をおいたシステムの開発が必要となる。また、システムが融通性、拡張性に富んでいること、さらに処理速度が使用するコードの数、連成の数に著しく依存しない等の課題も解決する必要がある。以上の必要性を満たすものが、オブジェクト指向のデータベース管理システムおよびコードの形態管理システムを媒介とした計算機支援の統合解析システムである。

データベース管理システムにおいては、性能評価で使用する種々のデータを統合的に管理することを目的に、以下の要求を満足する必要がある。

- ① 連成解析で使用するデータに関して、連成解析の中で複数のコードにより参照／追加／修正されるデータの一貫性、整合性等を確保し、またシステムの中においてデータが正確かつ効率的に使用できること。
- ② 解析で使用した入力、出力、データセット等を

適切に管理し迅速な検索が可能であること。

- ③ コードの検証・検証の成果や、取得した検証研究等の成果を、知識データベースとして管理できること。

- ④ データベース管理システムは、効率よくデータの参照ができる等の優れたユーザーマシンインターフェイスを有すること。

また、コードの形態管理システムにおいては、システム全体の品質保証を実施することを目的に、開発されたシステムの修正・改訂の履歴管理、ならびに一般化された手順によるコードの検証・検証が実施できることが要求される。

(3) まとめ

以上のような要求を踏まえ、さらに平成4年9月に公表した「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—」¹¹⁾における性能評価の枠組みを念頭ににおいた上で、今後はニアフィールドの諸現象を解析できる具体的な運成解析システムの構築を中心に研究開発を進めていくこととする。

3.2 地球化学コードPHREEQEの検証・検証^{11),12)}

(1) 検証・検証の体系的アプローチ

実際にPHREEQEの検証・検証を行うにあたり、まず、種々の解析コードについて、必要とされるレベルの品質保証を行うための方法論について体系的に検討し一般化を試みた。

一般化を図った体系的な方法論について示す。品質保証の一連の手続きは、地層処分システムの性能評価で使用されるコードが多様であることから、これに柔軟に対応できる体系を構築することが重要である。そのためには、コードの品質を保証する上で必要となる視点を、共通の尺度として明らかにすることが求められている。これによって、過不足なく合理的に品質保証の評価結果を示し、かつこれらの情報を一定の形式で保存することが可能となる。考えられる視点のうち、すでに開発されているコードの品質保証を行う上で特に重要なものとして、機能性、正確性、信頼性、移植性があげられる。これらを満足するために必要な標準化項目を明らかにした上で4つの段階からなる品質保証を行うための枠組みを作成した(図8)。

まず、コードの持つ機能および適用範囲のうち、解析者のニーズに応じて品質保証の範囲を明確にする。次に、解析コードの開発フィロソフィー、文書化方法の検査として、数学的定式化および解法が論理的かつ正確にコーディング、資料化されていることの確認を行う。適切でない箇所が発見された場合

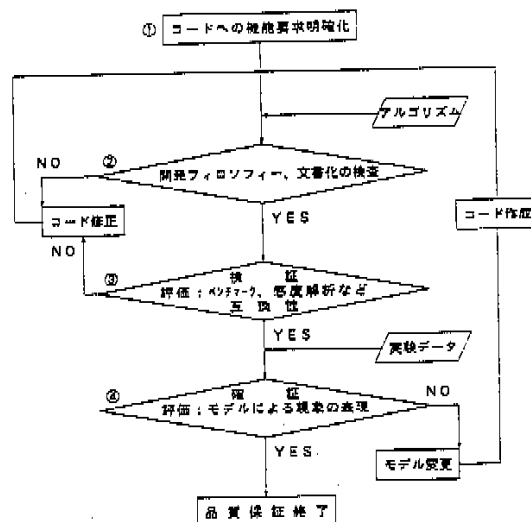


図8 品質保証手続きのフロー

は、コードの修正を行い再度レビューにかける。第3のステップとして、計算機上でコードの正確性を示すため、標準問題の設定、解法、評価を行う。併せて、正確性を保証できる範囲としての、コードの信頼性に関しては、モデルの適用可能なパラメータ空間の範囲を把握する。さらに移植性に伴う正確性について検討し、注意すべき点があればコードの修正またはこれに関する情報を保存する。最後に現象を適切に表現していることを確認するための評価を実験データとの比較により行う。実験データの選定にあたっては、対象とする問題の特徴、コードの適用範囲を考慮した上でマトリクス関係図等を利用して系統的に行う。以上の体系的アプローチを、地球化学コードPHREEQEを対象として具体的に展開し、方法論の検討を行った。

(2) PHREEQEの検証・検証方法

コードへの機能要求の明確化では、化学的環境因子(地下水水質: pH, Eh, イオン濃度)、核種移行特性を支配する因子(溶解度等)を取り上げ、開発フィロソフィー、文書化方法の検査は、定式化、解法、コーディングのチェックを行った。検証は、手計算との比較、ベンチマークを行った。手計算は、化学的に単純な系に限定し、pH, Eh化学種分配、錯体形成反応および溶解度については物質収支式と質量作用式、イオン活量係数はDaviesの式、溶解度の温度依存性はVan't Hoffの式を各々用いて解を求めた。ベンチマークは、多金属-多配位子系等、より複雑な化学系を対象として計算し、他のコードMINEQLの結果と比較した。また、計算機自体の

特性による影響を確認するために複数の機種による計算の比較も実施した。確認については、室内および原位試験データへの適用を行った。なお、地球化学計算は、熱力学データに依存しているためデータベースの一貫性、信頼性等についても検討する必要がある。ここでは、熱力学データの編集、選択に関して一連の手続きが確立されているデータを用いた。

(3) 解析結果

① 検証結果

化学的に単純な系においてコードと手計算の比較結果は、相対誤差5%以内に収まった。次に、複雑な系におけるベンチマークは、結果の一例として表2に示すように、PHREEQEとMINEQLの結果が一致することを確認した。しかし、例えば酸化還元反応を伴わない鉱物の溶解反応の計算を、反応の進行に応じてEhを固定しないオプシオンで行った場合、計算機により結果(Eh, 溶解度)が異なる等の注意すべき点が見つかり、これを回避するための運用マニュアルを作成した。

② 確認結果

シェーバイトおよびラザフォードの溶解度研究¹³⁾のデータを用いて該当鉱物の飽和度を予測した。その結果、シェーバイトの飽和度は0.58、ラザフォードの飽和度は0.34となり、ほぼ平衡状態であることが予測できた。また、ウラン鉱

床で実測された地下水データ¹⁴⁾を使用して、鉱床に存在すると考えられる閃ウラン鉱、コフィン石の飽和度を予測した。その結果予測された飽和度は、あらかじめ設定した判定基準(±3.0)内に収まり平衡鉱物を適切に予測できることがわかった。この結果、実験・天然系に対する適用の可能性を示すことができた。

(4) まとめ

地球化学コードPHREEQEを例として、体系的な検証・確認を行った結果、計算機により、反応に伴うEh, 溶解度の計算結果の異なる場合がある等の注意すべき点が明らかとなった。今後このような体系的な視点に基づき他のコードの検証・確認を実施していきたい。

(東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室
宮原 要、畑中耕一郎、大井貴夫、牧野仁史)
(環境技術開発推進本部 処分研究グループ
梅本博之、石黒勝彦、内藤守正)

参考文献

- 1) 動燃事業団、高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書、PNC TN1410 92-081, (1992)。
- 2) 柳澤孝一他：我が国の水理学的環境把握のための水頭解析、日本原子力学会、1991年秋の大会予稿集、P553。
- 3) Oakboro, J. et al.: Effects of Heat from High Level Waste On Deep Geological Repository, The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, Sendai, (1991)。
- 4) Ishikawa, H. et al.: Quantitative Analyses of Environmental Conditions Around Overpack, Proc. Nucl. Waste Packaging Focus '91, PP.35-41。
- 5) Fujita, T., Hara, K., Yusa, Y. and Sasaki, N., "Application of Elasto-Plastic Model to Mechanical and Hydraulic Behavior of Buffer Material under Water Uptake in a Repository", Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol.212, (1991)。
- 6) Saotome, A.: Study on Mechanical Stability of Engineered Barrier System for Geological Disposal of HLW, 11th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Tokyo, (1991)。
- 7) 佐々木道明他：人工バリアシステムによる地下水の化学的緩衝作用のモデル化、日本原子力学会、1991年秋の大会予稿集、P555。
- 8) Masuda, S. et al.: Intrinsic Performance of the Engineered Barrier System, Proc. Nucl. Waste Packaging, Focus '91, PP. 15-23。
- 9) Honda, A.: Long Life Prediction of Carbon Steel Overpack for Geological Isolation of High-Level Radioactive Waste, Life Prediction of Corrodible Structures, NACE, Kauai, (1991)。
- 10) 畑中耕一郎他：地下水シナリオに対する天然バリアシステムの強度解析、日本原子力学会、1991年秋の大会予稿集、P560。
- 11) 畑中ら：「地層処分性能評価における解析コードの品質保証 (I) - 検証・確認の体系的アプローチ」、日本原子力学会 (1992秋の大会) 予稿集、P1。
- 12) 石原ら：「地層処分性能評価における解析コードの品質保証 (II) - 地球化学コードPHREEQEの検証・確認-」日本原子力学会 (1992秋の大会) 予稿集、P2。
- 13) 例えば、K.H. Anver and H.Leider: J. Am. Chem. Soc., 77, 1448-1450 (1955)。
- 14) 例えば、J.R. Chatham et al.: US Department of Energy GJO 70-380-E (1981)。

表2 CO₂雰囲気下における方解石、石コウの同時平衡による溶液組成の計算結果

	PHREEQE-80	MINEQL	PHREEQE-80	MINEQL
	P, CO ₂ = 10 ^{-1.5}		P, CO ₂ = 10 ⁻¹	
pH	7.7287	7.66	6.9719	6.90
I	0.0406	0.0406	0.0417	0.0414
log molalities of total component concentrations of selected species				
ΣCa	-1.8168	-1.82	-1.963	-1.81
ΣC	-3.4496	-3.46	-2.602	-2.66
ΣS	-1.8217	-1.83	-1.829	-1.84
Ca ²⁺	-1.992	-2.00	-1.975	-1.98
CO ₃ ²⁻	-3.886	-3.85	-5.897	-5.87
HCO ₃ ⁻	-3.513	-3.51	-2.769	-2.78
SO ₄ ²⁻	-1.999	-2.00	-2.007	-2.01