

ニアフィールド核種移行解析における 数値解の安定性に関する研究

(動力炉・核燃料開発事業団 契約業務報告書概要)

技術資料		
開示区分	レポートNo.	受領日
Z	ZJ1222 95-003	1995.5.31

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

1995年3月24日

株式会社 三菱総合研究所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、限られた関係者だけに開示するものです。については、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示または内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには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。

〒107 東京都港区赤坂1丁目9番13号三会堂ビル
動力炉・核燃料開発事業団 環境技術開発推進本部
処分研究グループ

限定資料
PNC ZJ1222 95-003
1995年3月

ニアフィールド核種移行解析における 数値解の安定性に関する研究

伊藤 武彦*
中島 研吾*
角田 弘和*

要旨

ニアフィールドの核種移行解析においては緩衝材中及び緩衝材周辺の岩盤中の核種移行プロセスを組み合わせたモデルが使用され、コードの開発にあたっては様々な数値解析/離散化手法が使用される。従って、これらの性質を充分に把握したうえで解析コードを使用することは解析結果の評価の信頼性の観点から非常に重要である。しかしながら、これまで核種移行解析に使用してきた解析モデル/コードの適用範囲、安定性については充分な検討が加えられていないのが現状であった。

本研究ではニアフィールドの核種移行解析コード Release と Meshnote について、解析条件を決定する様々な物性値をパラメータとして変化させることによって、解の精度および安定性に及ぼす影響について評価した。

Release コードについては安定した解を得ることのできるタイムステップの上限を、分割数、拡散係数、分配係数から求める式を導出し、より複雑な崩壊系列に対してもこの式が有用であることを確認した。また、分割数の影響による解の精度についても検討を加え、分割数の違いによる解の精度差は解析条件によらずほぼ一定であるとの結果を得た。

Meshnote コードについても、分割数の影響による解の精度について検討を加えたが、分割数の違いによる解の精度差は解析条件によらずほぼ一定であるとの結果を得た。

本解析により、ニアフィールド核種移行コード Release、Meshnote を使用するに当たっての適切な「分割数」「タイムステップ」を与える指針を得ることが可能になった。

本報告書は、株式会社三菱総合研究所が動力炉・核燃料開発事業団との契約により実施した業務の成果である。

契約番号：060D0355

事業団担当部課室：環境技術開発推進本部 処分研究グループ

事業団担当者：佐々木 憲明

* (株) 三菱総合研究所 総合安全研究センター

LIMITED DISTRIBUTION

PNC ZJ1222 95-003

March,1995

Numerical Stability of the "Near-Field" Calculation Model for the Transport of Radioactive Dissolved Constituents

Takehiko Itoh*, Kengo Nakajima*, Hirokazu Tsunoda*

Abstract

In the "Near-Field" calculation for the transport of radioactive dissolved constituents, various numerical models and discretization methods have been applied to simulate convection and diffusion through Backfilling Material (Bentonite) and rock region.

To obtain accurate solutions efficiently, various parameters should be defined based on the criteria which depends on calculation model and method. But there has not been this type of criteria in the near-field transport calculation.

In this study, some benchmark problems are applied to 2 typical near-field calculation codes ("Release" and "Meshnote") to get the criteria for accuracy, stability and efficiency. In the benchmark problems, various types of parameter (mesh size, diffusion coefficient and distribution factor) are considered.

For "Release" with Cranck-Nicolson type central difference time integration, an equation which defines optimum time step size for various parameters has been obtained through benchmarks. This equation is very simple but it is valid for wide range of parameters and very complicated decay chains. In both codes, parameter value and conditions do not affect the optimum mesh size from the viewpoint of accuracy and consistency.

Work performed by Mitsubishi Research Institute, Inc. under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

PNC Liaison : Noriaki Sasaki(Isolation System Research Program, Radioactive waste Management Project)

* : Mitsubishi Research Institute, Inc. Research Center for Safety Science

目 次

第 1 章 目的	1
第 2 章 本論	3
2.1 両コードの相違点	3
2.1.1 Release と Meshnote の数学モデルの違い	3
2.1.2 Release と Meshnote の境界条件の取り扱い	4
(1) Release	4
(2) Meshnote	4
2.2 解析条件・評価方法	5
2.2.1 解析手順	5
2.2.2 着目するパラメータ及びその範囲	6
2.3 その他共通な物性値	7
2.3.1 評価方法	7
2.4 解析ケース	9
2.4.1 崩壊あり／生成なしの場合	9
2.4.2 崩壊あり／生成ありの場合	9
2.5 解析結果のまとめ	11
第 3 章 まとめ	13

第1章 目的

ニアフィールドの核種移行解析においては緩衝材中および緩衝材周辺の岩盤中の核種移行プロセスを組み合わせたモデル(例えば拡散モデル/移流拡散モデル)が使用される。これらのモデルは室内/原位置試験から得られる核種移行メカニズムに関する知見に基づき構築されるものである。すなわちこれらのモデルは、解析対象の形状、その内部構造および支配的プロセスを考慮することにより種々の仮定/前提条件が設定され、単純化されたものである。単純化されたモデルは計算機上でコード化され、解析的/数値的手法によって解かれる。解析コードの開発にあたっては様々な数値解析/離散化手法解析モデルが使用される。従って、これらの解析コードは、

- 基本的なモデルの考え方
- モデル設定の前提条件
- 数値解法

等によって特有の性質を有する。このため、これらの性質を充分に把握したうえで解析コードを使用することは解析結果の評価の信頼性の観点から非常に重要である。が、これまで核種移行解析に使用してきた解析モデル/コードの適用範囲、安定性については充分な検討が加えられていないのが現状である。

本研究は、ニアフィールド核種移行解析を行うためのモデル/コードの適用範囲、解の安定性についての評価体系を確立することを目的として実施するものである。本年度はニアフィールド核種移行解析コード”Release.mult.rev1”*(以後 Release と略す) および”Meshnote”を選定した。これらは、ニアフィールド核種移行解析コードの中で比較的単純なモデルを採用している。2つのコードに対して

- 内容調査
- 相互比較
- 数値解析

を行うことにより、それらの適用範囲および安定性についての検討を実施し、評価体系確立へ向けての知見を得る。手順は次頁の通りである。

*複数崩壊系列に対し、溶解度分割を考慮した改良版 Release

1. 解析コードの機能を調査することにより評価項目を抽出する。
2. それぞれの項目を評価するために適当なベンチマーク・テストを作成する。
3. ベンチマーク・テストの結果をもとに、コード使用にあたってのパラメータの最適な設定(精度/計算時間)のための指針を作成する。
4. 2つのコードで異なった定式化を採用している場合の優劣を評価する。
5. 最後に必要に応じてコード改良を実施する。

第 2 章 本論

2.1 両コードの相違点

Release と Meshnote の両コードは、緩衝材中におけるニアフィールド核種移行を取り扱い、一次元円筒座標系における非定常拡散方程式を差分法を用いて解いている。拡散の他、放射性核種の挙動に関する緩衝材中の沈澱、吸着、崩壊、生成など種々の現象を連立させて解くことができる。

両コードは、基本的には同じモデルに従いこれらの現象を計算しているが、表 2.1 に示すように解析機能が若干異なっている。中でも数学モデルおよび境界条件については取り扱いがかなり異なるため説明を加える。

表 2.1 : Release と Meshnote の相違点

	Release	Meshnote
吸着項	線形吸着	Langmuir 型非線形吸着
タイムステップ	固定増分	自動増分
崩壊連鎖	数値解	解析解
数学モデル		(後述)
境界条件		(後述)
メッシュ分割	境界とセル境界が一致	境界はセル中心

2.1.1 Release と Meshnote の数学モデルの違い

両者の違いには以下のようないわゆる存在する。

- Release
 - 溶液濃度、沈澱濃度それぞれについて差分式を解く。
 - 移流項の取り扱いがある。
 - 離散化の手法として、Crank-Nicolson の陰解法を用いる。
- Meshnote
 - 溶液濃度、沈澱濃度、吸着濃度全てを足しあわせた全濃度について差分式を解く。
 - 移流項の取り扱いがない。
 - 離散化の手法として、完全陰解法を用いる。

2.1.2 Release と Meshnote の境界条件の取り扱い

(1) Release

Release コードの境界条件は Dirichlet 型であり、緩衝体内表面、緩衝体外表面とともに核種濃度を規定することで与える。但し、内側境界に関してはインベントリ内の核種量を考慮し、空になった時点以降は、

$$(核種の浸出率) = 0.0$$

とする。

(2) Meshnote

Meshnote コードでは内側境界に、"Reservoir"、外側境界に" Mixing Cell" と呼ばれるセルを仮想的に設け、その中で境界条件を処理している。

"Reservoir" は、インベントリ内全ての核種量が含まれ、沈殿と崩壊・生成のみを考慮する領域である。溶解限度を超過する核種量は沈殿物として取り扱われ、沈殿が全て消失した後には、液相中の核種濃度は溶解度より次第に低下する。

"Mixing Cell" は、緩衝材と岩盤との境界部を模擬する領域であり、この領域に到った核種は、瞬時に完全混合が行われ、Mixing Cell 内で定義された地下水水量に従い流出する。

2.2 解析条件・評価方法

2.2.1 解析手順

本研究の目的は、核種移行解析コード Release および Meshnote について、種々の解析条件下での最適なタイムステップおよび分割幅の組み合わせを定めることである。すなわち、計算精度を保ちかつ、計算時間を短縮できる限界を検出することである。両コードの数値解を決定するには、

- 模擬する現象(拡散、吸着、沈殿など)
- 拡散係数・溶解度などのパラメータ
- タイムステップおよび分割数(幅)

など種々な条件が存在する。これらすべての条件を変化させ計算値の感度解析を実施するためには、各パラメータが取り得る値を5通りずつと限定しても、 $10^5 \sim 10^6$ オーダーのケースの計算が必要なため、以下の手順でベンチマークを実施することにする。

1. まず着目するパラメータおよびその種類・値の範囲を決定する。
2. 1. で着目したパラメータを代表的な1組に固定し、タイムステップおよび分割数(幅)に関する感度解析を、
 - 崩壊あり／生成なし(単核種の崩壊のみ)の場合
 - 拡散あり／吸着なし
 - 拡散あり／吸着あり
 - 崩壊あり／生成あり(崩壊系列を考慮した)の場合
 - 拡散あり／吸着なし
 - 拡散あり／吸着あり
3. 次にあるパラメータを変化させた場合に、2で得られた基本ケースの結果と比較し、タイムステップあるいは分割数(幅)をどの様に変化させれば望ましい結果が得られるかを考察する。
4. 上記解析結果より、ある分割数(幅)に対するタイムステップの上限値を与える式を導出する。
5. より複雑に条件が組合わさった場合に4.で導出した式が、当てはまるか否かを確認する。

2.2.2 着目するパラメータ及びその範囲

本研究が対象としている解析コードで、その解析条件を規定する要因には以下に挙げるものが考えられる。但し、ベンチマークでは複数崩壊連鎖は取り扱わないため、同位体の存在比は考慮しない。

- 核種の拡散係数
- 核種の溶解度
- 核種の半減期
- 核種の分配係数
- 空隙率
- インベントリ内の核種量

以上の6パラメータのうち、空隙率、インベントリ内の核種量は固定とし、その他の4パラメータのとりうる値の範囲を以下のように定めた。用いた値は動力炉・核燃料開発事業団平成3年度レポートを参考にしたものである。

核種の実効拡散係数 (De)	$3.0 \times 10^{-11} \sim 3.0 \times 10^{-9} m^2/s$
核種の溶解度	$3.0 \times 10^{-8} \sim 3.0 \times 10^{-4} mol/m^3$
核種の半減期	$2.0 \times 10^3 \sim 2.0 \times 10^7 yr$
核種の分配係数	$10^{-3} \sim 10^1 m^3/kg$

それぞれのパラメータに対し各々5つの代表値を設定し、それらの組合せにより解析条件を決定することにする。代表値および解析条件の呼称は以下の通りである。

- 拡散係数

ケース呼称	D1	D2	D3	D4	D5
拡散係数値 (m^2/s)	3.00×10^{-11}	9.51×10^{-11}	3.00×10^{-10}	9.51×10^{-10}	3.00×10^{-9}
拡散係数値 (m^2/yr)	9.46×10^{-4}	3.00×10^{-3}	9.46×10^{-3}	3.00×10^{-2}	9.46×10^{-2}

- 溶解度

ケース呼称	C1	C2	C3	C4	C5
溶解度 (mol/m^3)	3.50×10^{-8}	3.50×10^{-7}	3.50×10^{-6}	3.50×10^{-5}	3.50×10^{-4}

- 半減期

ケース呼称	H1	H2	H3	H4	H5
半減期 (yr)	2.15×10^3	2.15×10^4	2.15×10^5	2.15×10^6	2.15×10^7

- 分配係数

ケース呼称	L1	L2	L3	L4	L5
分配係数 (m^3/kg)	10^{-3}	10^{-2}	10^{-1}	10^0	10^1

2.3 その他共通な物性値

その他解析条件を決定するパラメータ中、各解析で共通なものは以下の通りである。(図 2.1 参照)

核種浸出開始時刻	0 年
固化体中心から緩衝材内側までの距離	0.52m
固化体中心から緩衝材外側までの距離	1.50m
緩衝材高さ	1.95m
緩衝材密度(乾燥密度)	1.800 kg/m^3

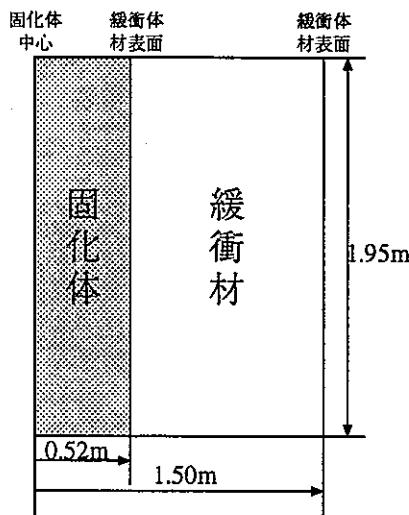


図 2.1：ニアフィールド計算対象モデル

2.3.1 評価方法

ベンチマークは各解析条件に対し、以下のような点に着目して実施した。

1. Release : 一定分割幅において、許容される最大タイムステップ
2. Release : 許容される最大分割幅
3. Meshnote : 許容される最大分割幅

ただし、3に関しては、崩壊あり／生成なしのケースについてのみ行った。これは、Meshnote コードは核種毎に拡散係数を設定できることによる。また、Release コードは時間積分にクランク・ニコルソン法を用いているため「解の振動」が発生することが予想される。Meshnote については、Release で見られるような解の振動が見られるかについても検討した。

この際、解析精度の許容限界を判定するために下記の条件を用いた。

- 1に関しては、緩衝材外側への核種放出量と緩衝材中の核種濃度分布に注目し、それぞれ解析結果値の誤差がタイムステップを十分細かくした解析結果から0.1%以内、解析結果の振動幅が0.1%以内の2条件のうち厳しい方を許容限界とした。
- 2,3に関しては緩衝材外側への核種放出量に注目し、ある分割幅における解析結果が分割幅を十分小さくした場合の解析結果から0.5%ないし、0.1%の誤差に収まる分割幅を許容限界とした。

実際のベンチマークにおいて1は、常に2条件のうち解の振動に関する条件が厳しくなった。具体的な判定基準としては、緩衝材外部への放出量の時間変化量が小さくなつたある時刻($10^3 \sim 10^5$ 年)前後の5ステップをとり、この10ステップ間の変化を直線近似し、この直線からの誤差を振動幅とした。この振動はタイムステップをある幅より小さくすると全く見られなくなるものであり、この限界のタイムステップを有効数字2桁で求めた。

例えば、後述するA1における、30分割($\Delta r = 0.0327m$)時の 10^4 年周辺10ステップの放出量は、表2.2のようになる。表より明らかのように、タイムステップを 1.15×10^{-1} 年より細かくすると振動は全く見られない。従ってこのケースのタイムステップの上限値は有効数字を2桁とり、 1.2×10^{-1} 年とする。

表 2.2 : Releaseによる解析結果：緩衝材外部への放出量
崩壊あり／生成なし／拡散あり／吸着なし：A1. 基本ケース
 10^4 年周辺10ステップの解析結果

Δt	放出量 ($\times 10^{-8} mol/yr$)										誤差 (%)
1.0×10^{-1}	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	0.000
1.1×10^{-1}	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	0.000
1.15×10^{-1}	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	3.396	0.000
1.2×10^{-1}	3.500	3.297	3.500	3.289	3.500	3.296	3.500	3.288	3.500	3.297	6.23
1.3×10^{-1}	3.500	3.308	3.497	3.280	3.500	3.307	3.498	3.279	3.500	3.308	6.50

2.4 解析ケース

第2.2節の解析手順・条件に従い解析を行なう。解析ケースは以下のようになる。

2.4.1 崩壊あり／生成なしの場合

単核種が崩壊しながら拡散、吸着するケースを解析する。このため、沈殿は生じない。

A. 拡散あり／吸着なし：空隙率 $\epsilon = 1.0$ ：

この場合には吸着がないため、遅延係数の影響はない。

A1. 基本ケース：

タイムステップおよび分割幅を変化させて感度解析を実施し、両者間の相関関係を検討。

A2. 拡散係数をパラメータとした場合：

拡散係数とタイムステップ(分割幅)間の相関関係を検討。

A3. 溶解度をパラメータとした場合：

溶解度とタイムステップ(分割幅)間の相関関係を検討。

A4. 半減期をパラメータとした場合：

半減期とタイムステップ(分割幅)間の相関関係を検討。

B. 拡散あり／吸着あり：空隙率 $\epsilon = 0.33$ ：

B1. 基本ケース：

B2. 拡散係数をパラメータとした場合：

B3. 溶解度をパラメータとした場合：

B4. 半減期をパラメータとした場合：

B5. 遅延係数をパラメータとした場合：

遅延係数とタイムステップ(分割幅)間の相関関係を検討。

2.4.2 崩壊あり／生成ありの場合

ある核種(x)が別の核種(y)に崩壊・壊変しながら拡散、吸着、沈殿するケースを解析する。

C. 拡散あり／吸着なし：

C1. 拡散係数をパラメータとした場合：

C2. 溶解度をパラメータとした場合：

C3. 半減期をパラメータとした場合：

D. 拡散あり／吸着あり :

D1. 拡散係数をパラメータとした場合 :

D2. 溶解度をパラメータとした場合 :

D3. 半減期をパラメータとした場合 :

D4. 遅延係数をパラメータとした場合 :

2.5 解析結果のまとめ

Release コードについて行ったベンチマークにより以下のようなことが導かれる。

- ある分割数に対して、タイムステップの上限を決定する要因としては、

- 拡散係数
- 分配係数(遅延係数)

の 2 パラメータのみが影響している。

- その他のパラメータ

- 半減期
- 溶解度

などは、今回のベンチマークで使用した範囲のパラメータ値を用いる限りでは核種の濃度分布や緩衝材外部への核種放出量/挙動に影響は与えるが、タイムステップの限界を決定する要因とはならない。

- 複数の核種が崩壊・生成をする場合のタイムステップの上限値は、核種それぞれが、単体で崩壊するとした場合のタイムステップ上限値の中で一番小さいものに等しくなる。
- タイムステップの上限値を決定する要因は上で述べたように、分割数、拡散係数、分配係数(遅延係数)の 3 つであるが、それぞれに対して dT (タイムステップ) は

- N (分割数)²に反比例
- D (拡散係数: (m^2/yr)) に反比例
- R (遅延係数) に比例、但し R (遅延係数) は、

$$R = 1 + \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} Kd \cdot \rho$$

ε : 空隙率、 Kd : 分配係数 (m^3/kg)、 ρ : 緩衝材の密度 (kg/m^3)

で得られる。

の関係を有している。

- 上記関係を式で表すと

$$\Delta T = k \frac{R}{N^2 \cdot D} \quad k: \text{定数}$$
$$R = 1 + \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} Kd \cdot \rho$$

となる。[条件 A]

- 分割数を少なくすることに伴う精度の低下は、解析条件によらずほぼ一定であり、100分割時 ($\Delta r = 0.00980m$) の解析解に対する誤差を

- 0.5%以内に保つためには 7 分割以上 ($\Delta r = 0.140m$)
- 0.1%以内に保つためには 15 分割以上 ($\Delta r = 0.0653m$)

の分割数が必要である。[条件 B]

- 以上の A,B 両条件をグラフ上に表示したものが図 2.2 である。色つきの部分が両条件を満足する領域である。[条件 A] より導かれる曲線は D および R の値により移動するが、[条件 B] により導かれる直線は固定である。

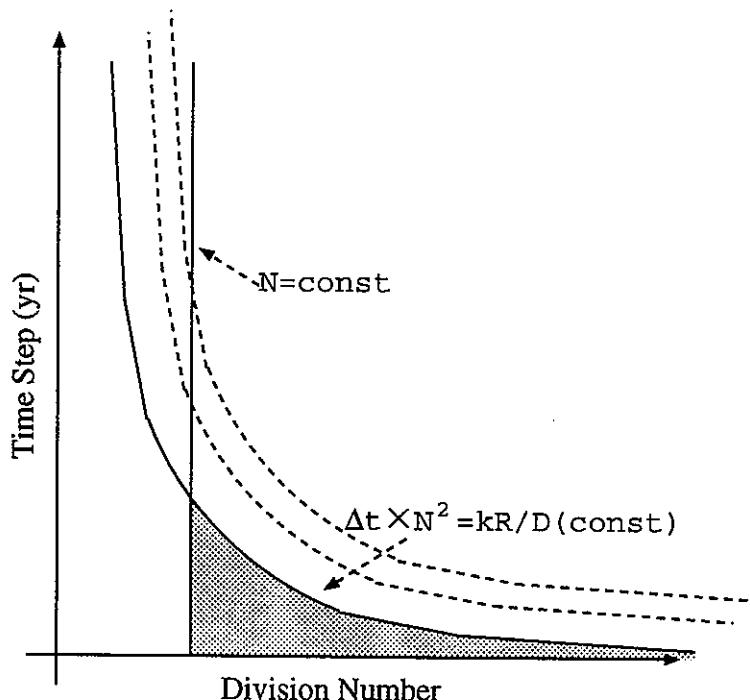


図 2.2 : Release コードにおいて満足される解を得るための条件
分割数およびタイムステップの関係

Meshnote の分割数を少なくすることに伴う精度の低下も、解析条件によらずほぼ一定であるが、Meshnote コードにおけるある時刻の濃度/緩衝体外部への放出量は、その前後の時刻から補間した値である。従って多少の誤差を考慮する必要がある。本解析の結果から 100 分割時 ($\Delta r = 0.00980m$) の解析解に対する誤差を

- 0.5%以内に保つためには 5~7 分割以上 ($\Delta r = 0.140m \sim 0.196m$)
- 0.1%以内に保つためには 10~20 分割以上 ($\Delta r = 0.0980m \sim 0.0490m$)

の分割数が必要であると考えられる。

第3章　まとめ

ニアフィールドの核種移行解析コード Release と Meshnote について、解析条件を決定する様々なパラメータを変化させることによって、解の精度および安定性におよぼす影響について評価した。基本的に両コードは、同様の解を導くことができるものであるが、Release は、適切なタイムステップを設定する必要があり、その条件について考察を加えた。

Release コードについては安定した解を得ることのできるタイムステップの上限を、分割数、拡散係数、分配係数から求める式

$$\Delta T = k \frac{R}{N^2 \cdot D}$$
$$R = 1 + \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} Kd \cdot \rho$$

ここで ΔT : タイムステップ (yr)、 R : 遅延係数、 N : 分割数、 D : 拡散係数 (m^2/yr)

ε : 空隙率、 Kd : 分配係数 (m^3/kg)、 ρ : 緩衝材密度 (kg/m^3)、 k : 定数 (1.00) である。

を導出し、より複雑な崩壊系列に対してもこの式が有用であることを確認した。また、分割数の影響による解の精度についても検討を加え、分割数の違いによる解の精度差は解析条件によらずほぼ一定であり、15 分割 ($\Delta r = 0.0653m$) 以上を目安とするのが望ましいとの結果を得た。

Meshnote コードについては、Release コードにおいて解が振動するような解析条件下で、同様の現象が確認されるかに主眼をおいて解析を進めたが、今回の解析中に解の振動のような現象は見られなかった。これは、Release がクランク・ニコルソン法を用いているのに対し、Meshnote が完全陰解法を用いていることによるものと思われる。

また、分割数の影響による解の精度について検討を加えたが、分割数の違いによる解の精度差は解析条件によらずほぼ一定であり、20 分割 ($\Delta r = 0.0490m$) 以上を目安とするのが望ましいとの結果を得た。

本解析により、ニアフィールド核種移行コード Release を使用するに当たっての適切な「分割数」「タイムステップ」を与える指針を得ることができた。

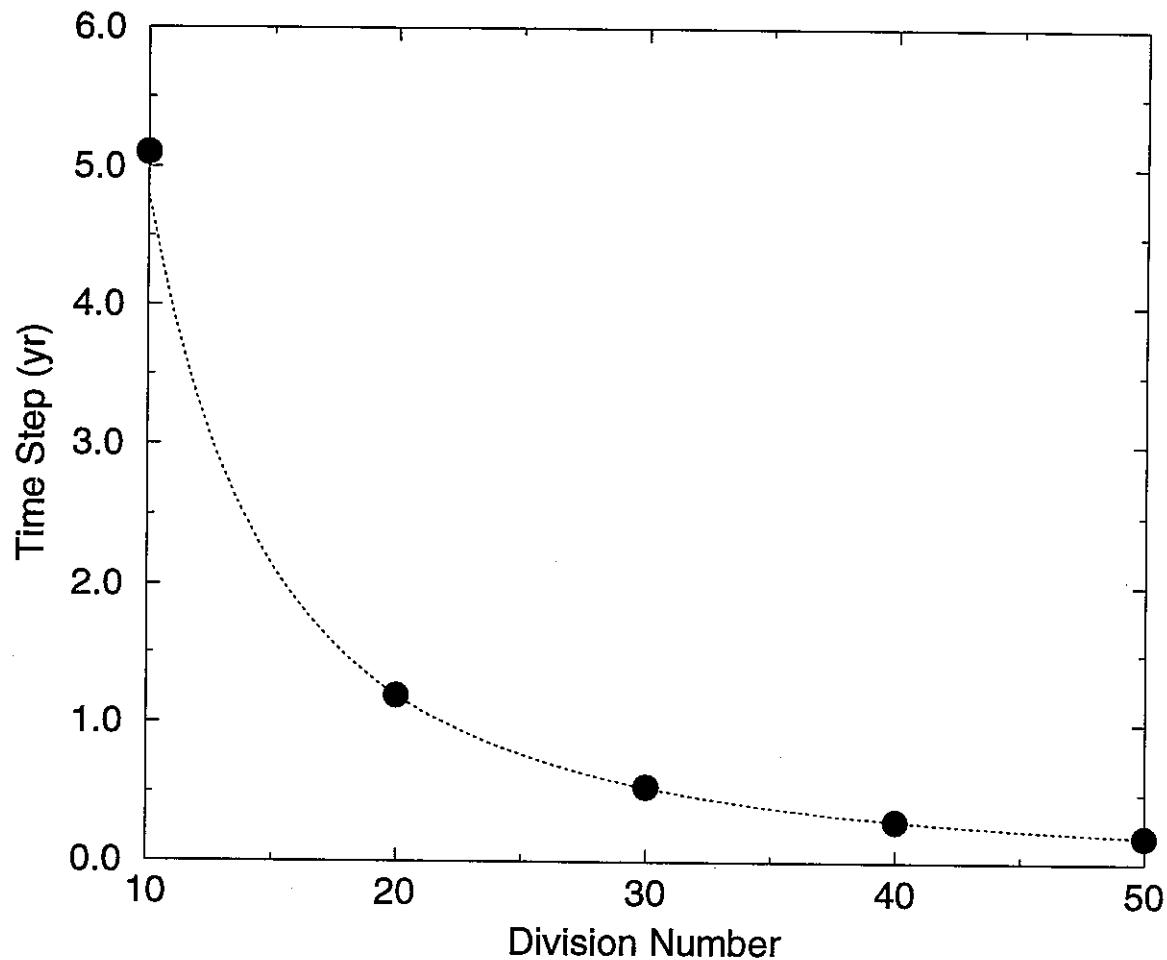


図 3.1 : Release による解析結果：分割数に対するタイムステップの上限
崩壊あり／生成なし／拡散あり／吸着あり：B1. 基本ケース
●：解析結果、点線： $(\text{分割数})^2 \times (\text{タイムステップ}) = 480$ のグラフ

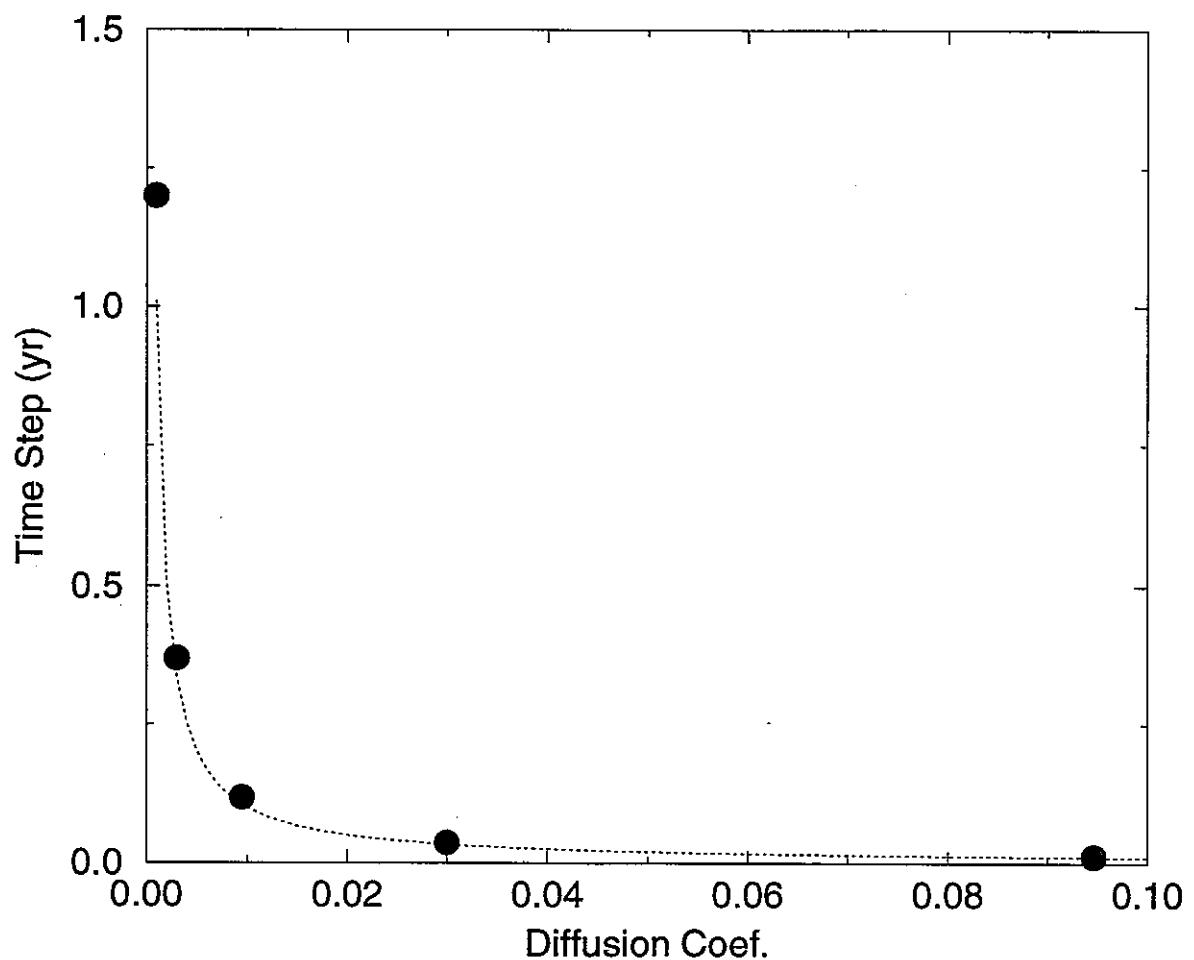


図 3.2 : Release による解析結果 :

拡散係数 (m^2/yr) に対するタイムステップ (yr) の上限 (30 分割)

崩壊あり／生成なし／拡散あり／吸着なし : A2. 拡散係数をパラメータとした場合

● : 解析結果、点線 : (拡散係数) \times (タイムステップ) = 1.1×10^{-3} のグラフ

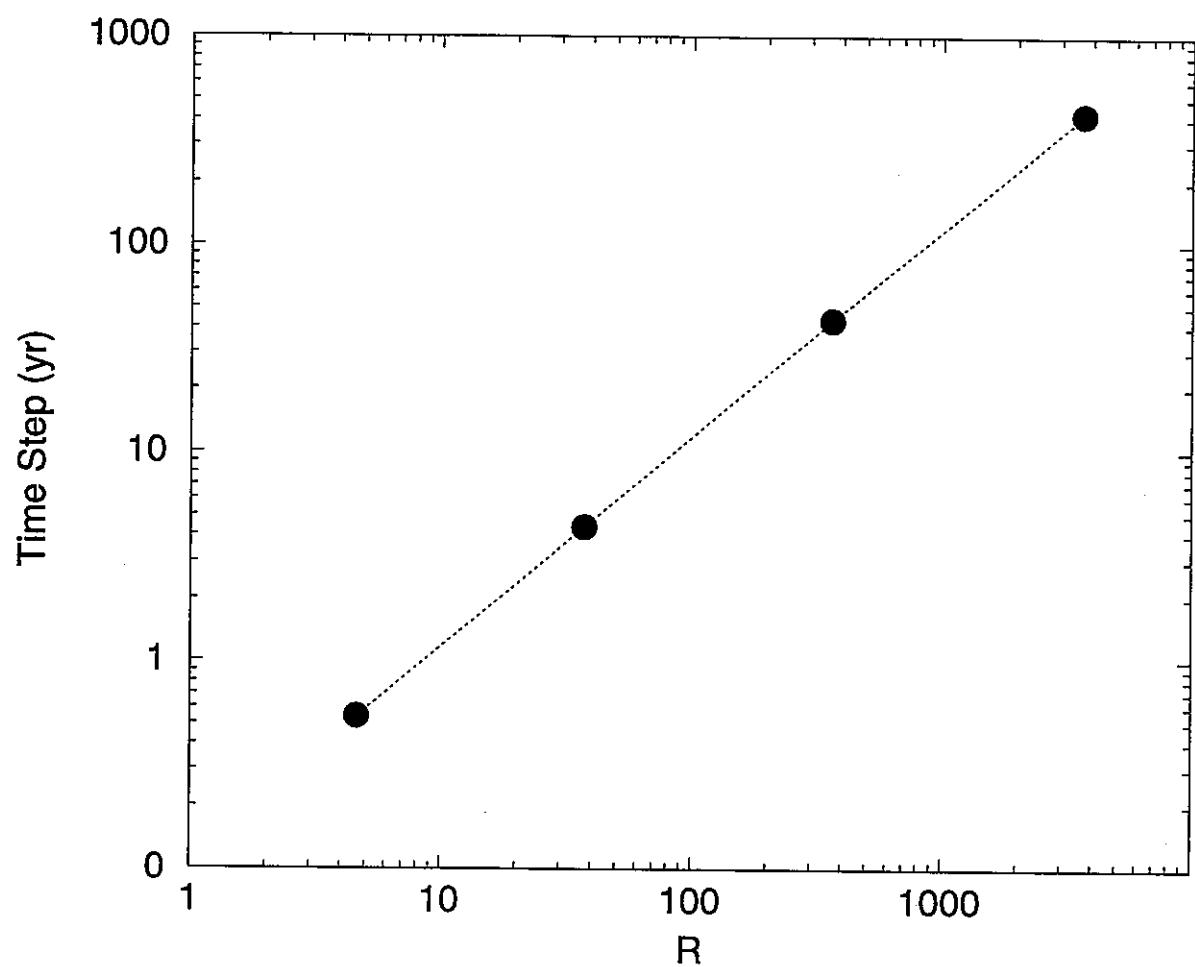


図 3.3 : Release による解析結果：遅延係数に対するタイムステップの限界(30分割)
崩壊あり／生成なし／拡散あり／吸着あり：B5. 分配係数をパラメータとした場合
●：解析結果