

# 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（Ⅱ）

（動力炉・核燃料開発事業団 委託研究内容報告書）

1995年2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は使用しないよう特に注意して下さい。

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      技術管理部

## 要 旨

高瀬 博康\*、中安 昭夫\*

昨年度の研究において開発した広義拡散方程式によるアプローチを踏襲し、

- ・シナリオ
- ・モデル
- ・パラメータ

に含まれる多様な選択肢の存在という性能評価に含まれる主要な不確実性要因の全てについて、統一的な方法で体系的に感度解析を行う手法（動的解析手法）の開発を更に進めた。より具体的には、単核種（崩壊連鎖は考慮しない）の分子拡散による移行について溶解・沈澱、吸着、コロイド生成等を瞬時平衡仮説により取り扱うものであった昨年度のモデルを発展させ、

- ・ 3メンバーの崩壊連鎖
- ・ ケイ素の溶解、沈澱、及び移行挙動を考慮したガラス溶解
- ・ ガラス溶解と congruent な核種溶出
- ・ 速度論的な反応モデルによる安定相及び準安定相の溶解、沈澱
- ・ 真性コロイド生成解離、及び分子拡散
- ・ 真性コロイドの線形、可逆な捕捉（吸着）
- ・ 真性コロイドの不可逆な捕捉（凝集 等）
- ・ 準安定相から安定相への固相-固相変化（結晶化）
- ・ ケイ素、鉄共沈による固化体近傍ケイ素濃度の低下とこれに起因するガラス溶解速度の増加

といった核種移行挙動自体についての種々のシナリオ、モデルを取り込んだものとした。また、これに加えて、ニアフィールド環境条件の変化が、核種移行の主要なパラメータである放射性元素の溶解度に及ぼす影響を解析することを可能とした。具体的には、環境変化を、

---

\* 日揮株式会社 原子力・環境・エネルギー事業本部

- 1) 時間的な変化のみ（位置依存性は無視）
- 2) 位置依存性（時間的な変化は無視）
- 3) 時間的な変化と位置依存性の両方を考慮

という3つのレベルに区分して段階的にモデル化し、これらによって引き起こされる核種移行への影響を定量的に検討可能なものとした。ここで、各レベルでの環境条件の取扱は、個別の事象を詳細にモデル化するのではなく、環境変化の時間・空間的なパターンを代表的な関数形で表現するShadow関数を用いた。

以上の新たな手法・モデル開発に加え、その適用性を確認するために昨年度本研究で開発した汎用DAEソーパーSPADE上でプログラム化し、これを用いて核種移行挙動の各シナリオ、モデル及びパラメータ、さらに、

- ・放射線分解による地下水 $p_e$ の変化
- ・海水準変動によるニアフィールド水理の変化
- ・隆起、浸食による地下水 $p_e$ の変化
- ・seismic pumpingによる酸化性地下水の浸入

といった環境変化に関してShadow関数に含まれるコントロールパラメータ（変化の範囲、程度等）を種々に変化させて感度解析を実施した。

本年度の研究における感度解析は、未だ、手法とモデルの適用性の確認に主眼を置く物であり、個々の解析で得られた結果は今後の研究開発の方向性を示すものとして有効ではあるが、安全性について確言するためには、さらに本研究を継続して行う必要がある。特に、次年度はアクチニド1系列（3核種）、核分裂生成物2核種に限られていた対象核種を増やし、また、いわゆるshared solubilityの問題を含めて4崩壊系列を同時に解析できるような拡張を行うこと、及び、特にシナリオ、モデルの抽出を体系的なシナリオ作成の手法（Top down法、Bottom up法、あるいはこれらの複合）と組み合わせることにより、より体系的かつdefensiveなものとしていくことが重要と考えられる。

## SUMMARY

Hiroyasu Takase\*, Akio Nakayasu\*

Following the result of the study in financial year 1994, we further extended the methodology based upon the idea of "generalized diffusion equation". This methodology is aiming to treat quantitatively the uncertainty arising from all the major sources in the performance assessment such as;

- scenarios,
- models,
- parameters,

in a unified fashion. The model we developed last year was limited to;

- single nuclide (no decay chain),
- instantaneous equilibrium assumption of all the mass partitioning, e.g., dissolution/precipitation, sorption, and colloid formation.

Thus we extended the model in this financial year to cover the effects of;

- 3-member decay chain,
- glass dissolution coupled with the transport and reactions of silica,
- congruent dissolution of radioactive elements,
- kinetic dissolution/precipitation of both stable and meta stable solid species,
- formation and dissociation of true colloid,
- linear and reversible trap of true colloid such as sorption,
- irreversible trap of colloid such as aggregation,
- change of metastable solid phase to stable phase (crystallization),
- co-precipitation of silica and iron, and its effects on glass dissolution behaviour.

Furthermore, we incorporated the shadow functions representing the effects of evolving

---

\* Nuclear & Advanced Technology Division, JGC Corporation

environmental conditions upon the performance parameters such as solubility of radioactive elements. We developed the shadow functions of following three levels adding complexity in order;

- 1) evolution of spatially constant environment,
- 2) spatial variation of time-invariant environment,
- 3) formation of spatial patterns in environmental conditions and their evolution.

The methodology described above was implemented into SPADE ( a general DAE solver) and was tested for various combinations of scenarios, models and parameters for nuclide migration in EBS and also for a number of environmental evolutions such as;

- growth of the oxidizing plume due to radiolysis,
- perturbation to the nearfield hydrology caused by sea-level change,
- intrusion of oxidizing near-surface water to the nearfield due to uplift and erosion,
- intrusion of oxidizing near-surface water to the nearfield due to seismic pumping.

Based upon these examples, the applicability of the methodology to the performance assessment has been confirmed.

In order to put our way forward and to utilize the methodology fully in the performance assessment of EBS, it is necessary;

- to incorporate multiple decay chains and solubility sharing,
- to couple this methodology with a formal scenario development approach such as Top-down method, Bottom-up method and their combinations so that the selection of scenarios and models could be more scientifically defensible.

## 目 次

はじめに .....	1
1. 人工バリア中核種移行挙動 .....	4
1.1 人工バリア中核種移行挙動に直接関係する現象に関する選択肢 .....	4
1.2 人工バリア中核種移行挙動のモデル化に関する選択肢 .....	5
1.2.1 ガラス溶解及び核種溶出挙動 .....	7
1.2.2 核種溶解・沈澱挙動 .....	9
1.2.3 コロイド生成・移行挙動 .....	12
2. 広義拡散方程式 .....	16
2.1 広義拡散方程式の一般形 .....	16
2.1.1 速い反応の表現 .....	16
2.1.2 遅い反応の表現 .....	18
2.2 反応速度項を含んだ広義拡散方程式の人工バリア中核種移行問題への適用 ...	20
2.2.1 人工バリア形状 .....	20
2.2.2 数学的定式化 .....	21
2.2.2.1 リザーバ .....	21
2.2.2.2 緩衝材及びオーバーパック領域 .....	24
2.2.2.3 ゆるみ域 .....	26
2.2.2.4 崩壊連鎖の取扱 .....	27
3. 核種移行挙動についての感度解析 .....	30
3.1 基本ケースについての解析 .....	30
3.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形 .....	30
3.1.2 解析条件 .....	32
3.1.3 結果 .....	37
3.2 核種移行挙動に関する代替ケースについての解析 .....	106
3.2.1 コロイド生成・移行 .....	106
3.2.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形 .....	106
3.2.1.2 解析条件 .....	108
3.2.1.3 結果 .....	110

3.2.2 鉄・ケイ素共沈 .....	127
3.2.2.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形 .....	127
3.2.2.2 解析条件 .....	127
3.2.2.3 結果 .....	129
3.2.3 結晶化 .....	135
3.2.3.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形 .....	135
3.2.3.2 解析条件 .....	135
3.2.3.3 結果 .....	135
4. 環境条件変化についての感度解析 .....	139
4.1 空間的に一様な環境条件の時間変化による影響 .....	144
4.1.1 放射線分解による地下水 $p_e$ の変化 .....	144
4.1.2 海水準変動によるニアフィールド水理の変化 .....	157
4.1.3 隆起・浸食による地下水 $p_e$ の変化 .....	165
4.2 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響 .....	177
4.2.1 酸化性地下水浸入による地下水 $p_e$ の変化 .....	177
4.3 時間・空間的に変動する環境条件による影響 .....	188
4.3.1 放射線分解による地下水 $p_e$ の変化 .....	188
4.3.2 酸化性地下水浸入による地下水 $p_e$ の変化 .....	197
5. まとめ及び今後の課題 .....	207
参考文献 .....	209
付録1 ニアフィールド現象に関するFEPリスト	
付録2 汎用DAEソーパーSPADEユーザーズガイド	
付録3 SPFファイル	



図リスト(1/2)

図1.1-1 核種相転移の全体像 .....	6
図2.2.1-1 人工バリアの形状 .....	20
図3.1.3-1 人工バリア中の核種濃度 .....	40
図3.1.3-2 人工バリアからの核種放出率 アクチニド基本ケース .....	88
図3.1.3-3 人工バリアからの核種放出率(Tc) 難溶解性核分裂生成物基本ケース .....	90
図3.1.3-4 人工バリアからの核種放出率(Np) アクチニド基本ケース感度解析 .....	91
図3.1.3-5 人工バリアからの核種放出率(U) アクチニド基本ケース感度解析 .....	95
図3.1.3-6 人工バリアからの核種放出率(Tc) 難溶解性核分裂生成物感度解析 .....	99
図3.1.3-7 基本ケースについての感度解析結果のまとめ(Np-237) .....	103
図3.1.3-8 基本ケースについての感度解析結果のまとめ(U-233) .....	104
図3.1.3-9 基本ケースについての感度解析結果のまとめ(Tc-99) .....	105
図3.2.1.3-1(1) 人工バリア中の溶存温度(Np) アクチニドコロイドケース .....	112
図3.2.1.3-1(2) 人工バリア中のコロイド温度(Np) アクチニドコロイドケース .....	113
図3.2.1.3-1(3) 人工バリア中の安定相温度(Np) アクチニドコロイドケース .....	114
図3.2.1.3-1(4) 人工バリア中の準安定相温度(Np) アクチニドコロイドケース .....	115
図3.2.1.3-2 人工バリアからの核種放出率 アクチニドコロイドケース .....	116
図3.2.1.3-3 人工バリアからの核種放出率 難溶解性核分裂生成物コロイドケース ...	120
図3.2.1.3-4 コロイド生成・移行についての感度解析結果のまとめ .....	122
図3.2.1.3-5 人工バリアからの核種放出率 コロイド凝集についての解析ケース .....	125
図3.2.2.3-1 人工バリアからの核種放出率 可溶性核分裂生成物基本ケースおよび 鉄・シリカ共沈についての感度解析 .....	130
図3.2.2.3-2 可溶性核分裂生成物についての基本ケースおよび 鉄・シリカ共沈についての感度解析結果のまとめ .....	133
図3.2.2.3-3 人工バリアからの核種放出率 ケイ化鉄の沈澱が速い場合の 可溶性核分裂生成物(Cs-135)の放出率計算結果 .....	134
図3.2.3.3-1 人工バリアからの核種放出率 結晶化についての解析ケース .....	137
図4.1.1-1 放射線分解による地下水 $p_e$ の変化に対応したShadow関数 .....	148
図4.1.1-2 人工バリアからの核種放出率 放射線分解ケース .....	149
図4.1.2-1 海水準変動によるニアフィールド水理の変化に対応したShadow関数 .....	160
図4.1.2-2 人工バリアからの核種放出率 海水準変動ケース .....	161
図4.1.3-1 隆起・浸食による地下水 $p_e$ の変化に対応したShadow関数 .....	168

図リスト(2/2)

図4.1.3-2 人工バリアからの核種放出率 隆起・浸食ケース .....	169
図4.1.3-3(1) 隆起・浸食による処分場露出時に残存するNp-237が1年以内に溶出し 標準的な河川流量で希釈された場合の飲料水摂取による被ばく線量 ....	173
図4.1.3-3(2) 隆起・浸食による処分場露出時に残存するU-233が1年以内に溶出し 標準的な河川流量で希釈された場合の飲料水摂取による被ばく線量 ....	174
図4.1-1 空間的に一様な環境条件の時間変化の影響に関する感度解析結果のまとめ ..	175
図4.2.1-1 酸化性地下水浸入による地下水 $p_e$ の変化に対応したShadow関数 .....	181
図4.2.1-2 人工バリアからの核種放出率 酸化性地下水浸入（空間依存） .....	182
図4.2.1 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響についての 感度解析結果のまとめ .....	186
図4.3.1-1 放射線分解（時間・空間的变化）による地下水 $p_e$ の変化に 対応したShadow関数 .....	192
図4.3.1-2 人工バリアからの核種放出率 放射線分解（時間空間依存） .....	193
図4.3.2-1 酸化性地下水浸入による地下水 $p_e$ の変化（時間・空間的变化）に対応した Shadow関数 .....	200
図4.3.2-2 人工バリアからの核種放出率 酸化性地下水浸入（時間空間依存） .....	201
図4.3.1 時間・空間的に変動する環境条件による影響 .....	205

## 表リスト

表1.1-1 核種の形態についての選択肢 .....	4
表1.1-2 形態間の核種配分に寄与するプロセスの選択肢 .....	5
表1.2.3-1 人工バリア中核種移行挙動に関するモデル化オプションのまとめ .....	15
表3.1.2-1 基本ケースにおけるパラメータの標準値 .....	33
表3.1.2-2 基本ケースにおける計算ケース設定 .....	35
表3.2.1.2-1 コロイド生成・移行についての計算ケース設定 .....	109
表3.2.2.2-1 鉄・ケイ素共沈についての計算ケース設定 .....	128
表4.1 酸化性のsynthetic waterの地球科学特性設定のために仮定した鉱物のリスト ...	141
表4.2 EQ3/6による地下水特性算出結果 .....	142
表4.3 評価対象とする放射性元素のsyntheticな酸化性地下水に対する溶解度 .....	143
表4.1.1-1 放射線分解（時間変化のみ）についての計算ケース設定 .....	146
表4.1.2-1 海水準変動についての計算ケース設定 .....	158
表4.1.3-1 隆起・浸食についての計算ケース設定 .....	166
表4.2.1-1 酸化性地下水浸入（位置依存性）についての計算ケースの設定 .....	179
表4.3.1-1 放射線分解（時間・空間的変化）についての計算ケースの設定 .....	190
表4.3.2-1 酸化性地下水浸入（時間・空間的変化）についての計算ケースの設定 ...	198

## はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価には、多様な不確実性が含まれる。この不確実性の種類を、性能評価の手順に則して分類すれば以下の様なものがそれぞれ挙げられる。

- (1) 処分された廃棄物中の放射性物質が人間に影響を及ぼす過程、あるいはこの影響程度を規定する環境条件の将来の変遷に関するFEPs(Features, events and processes)の選定に関する不確実性
- (2) 選定された個々のFEPs及びFEPs間の相関についての理解とその数学的定式化に関する不確実性
- (3) 定式化された数学モデルを用いて評価を行う際の入力データの選定に関する不確実性

上記のいずれにおいても(FEPsの選定、数学モデルの作成、及び入力データ値の選定)選択の可能性は複数存在しており、しかも、評価対象となる時間・空間スケールの大きさに起因する観察結果や経験の不足のために、いずれの選択肢をとることが適切かを考える際に主観的な判断を完全に排除することは極めて困難であり、上述した種々の不確実性の影響が評価結果に含まれることが不可避である。

このような種々の不確実性の要因が性能評価に含まれざるを得ないことは、性能評価研究を実施する各段階を通じて極めて重要な意味を持つこととなる。例えば、性能評価の実施に先立ち設計、シナリオ解析、モデル開発及びデータ収集を行う準備段階においては、これに引き続いて行われる評価に含まれる不確実性をできるだけ小さくすることが課題であり、このために、それぞれの不確実性を減らすための課題（設計変更によって該当する不確実性の影響を低減する、保守的なモデルを用いることによって該当する不確実性要因が顕在化することを防ぐ、現象理解・データ収集を行うことによって本質的な不確実性そのものを低減する等）の重要度分類を行うことが必要となる。性能評価研究が全体として多くの研究領域にまたがるものであることを考えれば、この点はプロジェクト全体の収束性を保つ上で極めて重要である。

また、実際に評価を行い、地層処分の安全性についてのある（暫定的なものであったと

しても) 結論を導く際には、その判断の根拠としての評価結果に含まれる不確実性の種類と大きさを付記することが必須である。これは、統計的な評価手法を用いる場合には勿論明示的に為されることとなり、また(保守的な)決定論的評価においても、評価結果が被ばく線量の上限を与えることの確実性(信頼性レベル)を示すことによって為されなくてはならない。

評価の各段階において必要となる不確実性の取り扱いが最も有効に行われてきたのは、はじめに述べた三種類の不確実性要因のうち(3)についてである。これは、パラメータの不確実性と呼ばれ、通常の性能評価モデルを用い、入力データをある統計分布を持つ母集団からサンプリングすることによって行われる感度解析・不確実性解析の手法により定量化することが可能である。この結果、例えば人工バリア中の核種挙動についてパラメータの不確実性の影響を低減するための課題として最も重要な物は溶解度を算出するための熱力学データベースの確立であり、インベントリ制限となるSe-79や娘核種の沈澱成長という二次的問題を有するAm-241、Am-243といった例外を除けば分配係数取得の重要性はあまり高くないといった重要度分類の結果も得られている。しかしながら、この結果はあくまで(1)及び(2)の不確実性を無視したものであり、感度解析に用いるモデル及びその前提条件が変われば結果も当然変わる可能性がある。実際、最近の研究では、放射性元素の濃度が溶解度に達すると瞬時に沈澱が形成され過飽和状態は決して生じないという従来のモデルに代わり、溶解・沈澱の反応速度を現実的にモデル化した例では、評価結果が溶解度に支配されるのは沈澱反応が数週間のタイムスケールで生じる速い反応の場合に限られ、反応がこれよりも遅い場合には溶解度は核種放出率を実効的に制限する要因とはなり得ないことが示されている[Takase and Grindrod, 1994]。従って、理想的には、他の二つの不確実性要因についても同様の定量的な解析手法を用いることが望ましい。しかし、現実的にはこれら二つの不確実性要因においてはじめに述べた選択肢(FEPs、数学的定式化)を変更することは即ちモデル自体の変更となってしまうために、これまでこれらの要因(シナリオの不確実性、及びモデルの不確実性とそれぞれ呼ばれる。)についての定量的解析手法は開発されていない。

本研究は、前出の三つの不確実性要因(シナリオ、モデル、及びパラメータの選択肢の存在)の全てについて、定量的な感度解析と不確実性解析とを行うことを可能とする手法の開発を目的とした物である。具体的には、人工バリア内の物質移動が分子拡散によって支配されることのみを前提として、溶存イオン、吸着種、コロイドあるいは沈澱といった複数の化学形態が相互に相転移しつつ移行する過程を種々の内部あるいは外部事象の影響

により空間的にも時間的にも変化する環境条件の下に解析するという一般性の高い問題を、各現象が共通して持っている特性のみを括りだした広義拡散方程式により表現し、さらに、この方程式に含まれる自由度を広義拡散係数と呼ばれる量の代数的な表現として各現象に特有な性質を付加するという方法により取り扱う手法を用いる物である。昨年度の研究においては、単一核種について比較的簡単なモデルを作成し、上記手法の適用性を調べるための試算を行った。そして、種々の事象について合計400ケースの試算を行った結果、本手法が上記の目的のために利用できることを確かめた。

本年度の研究は、昨年度作成したモデルにガラス溶解挙動や、崩壊連鎖、及び溶解・沈澱反応の速度論的な表現といった事項を付加して拡張するとともに、このモデルを用いてより体系的な感度解析・不確実性解析を実施することにより前出の三つの不確実性要因さらに各要因の中のより具体的な事項の重要度分類について検討を加えたものである。

## 1. 人工バリア中核種移行挙動

昨年度の報告書[高瀬, 1994]に述べた様に、本手法はまず核種移行挙動を極力一般的にモデル化し、さらにこの際環境条件に依存すると考えられるパラメータを時間あるいは位置の関数として与えることによって核種移行挙動がこれらに対してどのような応答を示すかを定量化するものである。

そこで、本年度の研究においても、まず、人工バリア中の核種移行挙動そのものについて考えられる選択肢を抽出することとする。

### 1.1 人工バリア中の核種移行に直接関係する現象の選択肢

ここでは、昨年度の研究における前提を踏襲し、人工バリア内の物質移動は分子拡散によって支配されていることを仮定する。この場合、核種移行に直接関係する現象としては、拡散による動きやすさの異なる化学形態の存在と、これらの形態間での核種の配分に寄与するプロセスを考える必要がある。

この観点から、OECD/NEAの作成したFEPSリスト及び事業団殿から提示されたFEPsリストの中から該当するものを抽出・整理すると、下表に示す物となる。

表1.1-1 核種の形態についての選択肢

(1) ガラス固化体に固定化された状態
(2) 溶存イオン
(3) 吸着種
(4) 真性コロイド
(5) 疑似コロイド
(6) 吸着あるいは捕捉されたコロイド
(7) 沈澱 (安定相)
(8) 沈澱 (準安定相)

表1.1-2 形態間の核種配分に寄与するプロセスの選択肢

- |                               |
|-------------------------------|
| (1) ガラスからの (congruent な) 核種溶出 |
| (2) 核種の溶解・沈澱                  |
| (3) コロイド形成・解離                 |
| (4) 溶存イオンの吸着・脱着               |
| (5) コロイドの吸着・脱着                |
| (6) コロイドの濾過及び凝集による沈澱          |
| (7) 結晶化                       |
| (8) 放射性壊変                     |

ここで、放射性壊変は単一元素について形態を変化させるものではないが、化学特性の異なる親核種から娘核種への変化は、引き続いて娘核種の各形態間での再配分につながるものであること[Umeki et al, 1991] から、上記表に含めることとした。以上をまとめ、移行途中の核種の相転移の全体像を図1.1-1 に示す。

## 1.2 人工バリア中核種移行挙動のモデル化に関する選択肢

人工バリア中の核種移行挙動に直接関係する現象として前節で抽出された個々の選択肢について、これまで多くの研究者が数多くの代替案を提出している（その全体像については、例えば[Andersson et al., 1993] に体系的に整理されている）。そして、これらの夥しい数の研究例を俯瞰して見ると、その全ての選択肢を一つの手法に収容することは極めて困難に思われる。しかしながら、これらの代替的なモデルのほとんどは現象を説明するという点で分岐しているものが多く、これらの具体像を一旦捨ててしまえば本研究で考えるべき”移行メカニズムとしての機能”にさほど多くのバリエーションがあるわけではない。そこで、本節ではこの点に焦点をあてて、個々の具体形のモデルが核種移行メカニズムの数学的表現としてどの様に分類されるべきかをまとめてみることにする。なお、ここでの調査・整理の対象としては、今期の解析対象として考えるガラス溶解・核種溶出、核種の溶解・沈澱、及びコロイド生成・移行に主眼を置くこととする。



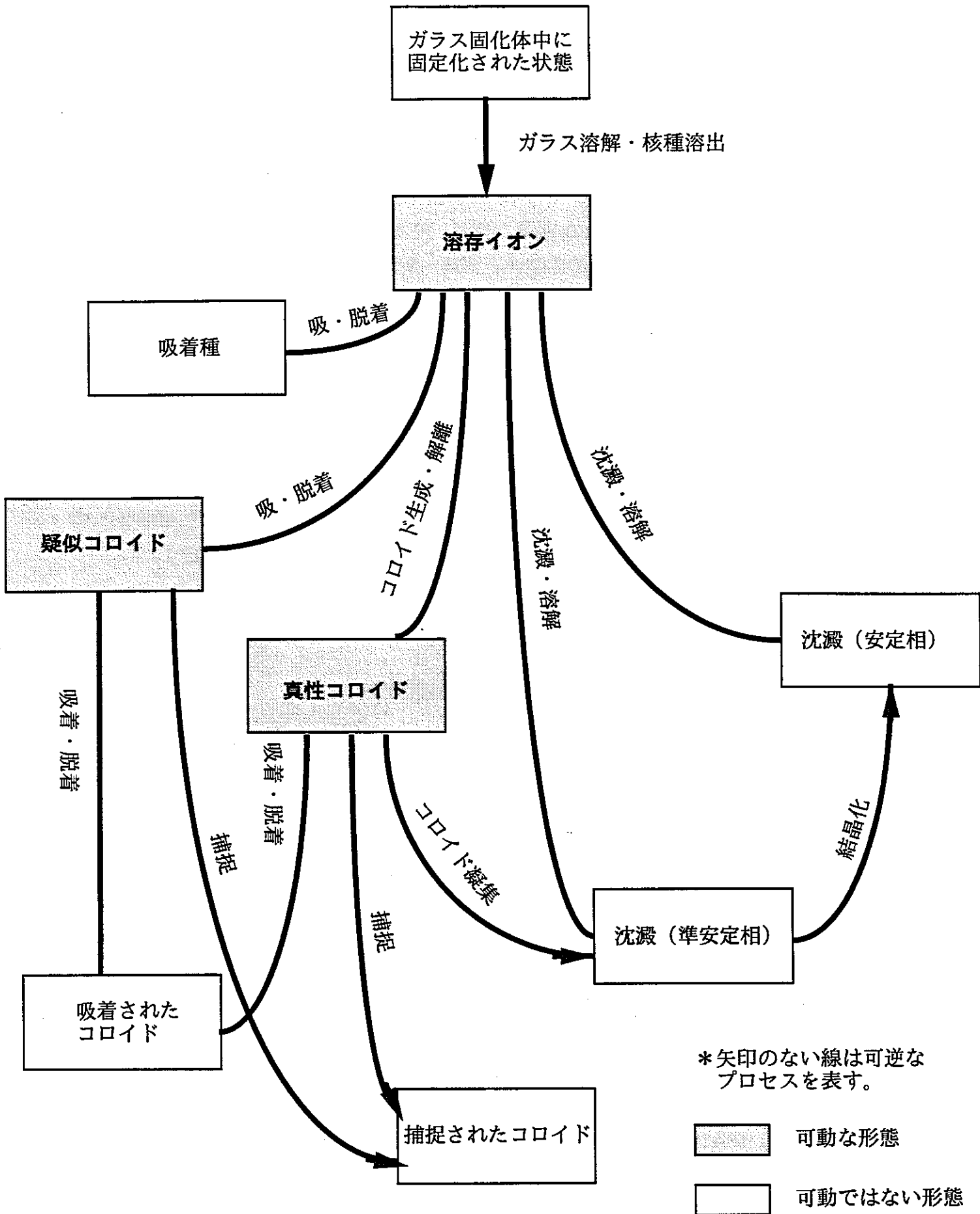


図1.1-1 核種相転移の全体像

### 1.2.1 ガラス溶解及び核種溶出

ガラス溶解モデルとしては、初期に多くの経験的なモデルが提案されているが、これらのモデルを地層処分安全性について問題となる超長期にわたって外挿することの客観的な根拠があり得ないことは、現在ではある種の合意となっているものと考えられる [Andersson et al., 1993]。そこで、ここではこれらに代わっていわゆるmechanisticなアプローチとして提案された反応速度論に理論的根拠を持つモデル群について考えることとする。

反応速度論に立脚したガラス溶解モデルは、表面反応が律速機構であることを仮定し、さらに変質相の形成とこれに伴う液相条件の変化をフィードバックさせる点に特徴がある。この系列に属するモデル化例としては、[Grambow and Strachan, 1988], [Mouche and Vernez, 1988], [Bourcier, 1991] などがある。これらのモデル間の差異は、主としてガラス表面に生じる変質相と液相反応の特定についてである。これらの相違は、ガラス浸出実験結果を如何に適切に説明し得るかという観点からは極めて大きな重要性を持つ物であり、従ってモデルの確証という意味からは無視し得ないものであるが、性能評価モデル体系の中に組み込んで核種放出率の計算に利用するという目的からは必ずしも重要なものではない。性能評価上の目的は、ガラスの将来像を知ることではなく、核種挙動の将来像を知ることなのである。しかしながら、液相側の条件に与えるガラス溶解成分の影響は、核種移行の環境を規定するという意味での重要性を有する可能性があり、この点については内部事象による環境変化として後節で論ずることとする。

さて、上述した相違点を上の理由から無視すると反応速度論型のいずれのモデルでも、ガラスの正味の浸出率 $R_G$ は次式で与えられることとなる。

$$R_G = \frac{S}{V} r_f (a_{H^+})^n (1 - e^{-\frac{A}{m}}) \quad (1)$$

但し、

$S/V$ ; ガラスの比表面積

$r_f$ ; intrinsic な反応速度定数

$a_{H^+}$ ; 水素イオンの活量

$A$ ; 親和力

とする。ここで、(1)式は厳密には反応が完全に可逆である場合にのみ成立する物であ

り、不安定相であるガラスのしかも長期の挙動を知る上ではこの式が0となった後にも進行する反応 residual reaction に相当する項 $k_f$ を加える必要がある[Andersson, 1993]。

もう一つのバージョンは、例えばHelgessonによって与えられたより簡易な下式である[Helgesson, 1979]。

$$R_G = k_f \left( 1 - \frac{Q}{K_{eq}} \right) \quad (2)$$

(2)式は、(1)式とは一見して異なっているが、(1)式中のAが平衡定数 $K_{eq}$ と溶解度積Qによって、

$$A = RT \ln \left( \frac{K_{eq}}{Q} \right)$$

として表現されることを考えれば、機能的には(1)式と全く同等なものであることが分かる。この場合には、(1)式中の速度定数と(2)式中のそれとの間には次の対応が成り立つ。

$$k_f = \frac{S}{V} r_f (a_{H^+})^n$$

Vernez 等によって与えられた次式が(2)式と、従って(1)式とやはり機能的に同等であることは、溶解度積を液相種である珪酸の活量 $a_{H_4SiO_4}$ によって表現すれば簡単に確かめることができる。

$$R_G = k_f \left( 1 - \frac{a_{H_4SiO_4}}{a_{H_4SiO_4}^*} \right) \quad (3)$$

そして、これら全てが Chambré 等[Chambré et al., 1988]によって与えられた次式と同等なことはもはや明らかである。

$$R_G = j_0 \left( 1 - \frac{C_{(r_0,t)}}{C_s} \right) \quad (4)$$

(4)式及びこれに residual reaction の項 $k_r$ を加えた表現は、人工バリアシステムについての全体的な評価にすぐに組み込める形式であり、本研究ではこれを唯一のガラス溶解モデルとして選定することとする。なお、(4)式は $k_r$ を加えた表現において $k_r$ が0となる特殊例であり、このことから、以下の $k_r$ を含んだ表現を用いる。

$$R_G = k_f \left( 1 - \frac{C_{(r_0,t)}}{C_s} \right) + k_r \quad (5)$$

一次反応速度型のモデルを考える場合の重要なモデル化オプションとしては、シリカの鉄との共沈生成の可能性が挙げられる。もし、この様なプロセスが生じ、かつ緩衝材等から供給されるシリカのフラックスよりも共沈生成率の方が大きい場合には、ガラス周辺のシリカ濃度は常に不飽和な状態となり、この場合には(5)式中の第一項の寄与が無視し得ないものとなる可能性がある(Andersson et al., 1993)。そこで、本研究では、シリカ濃度が緩衝材中の石英等により常に飽和に保たれる状態を仮定した基本モデルと、上記の鉄との共沈を加えた代替モデルとを考えることとする。

## 1.2.2 核種溶解・沈澱

核種の溶解・沈澱については、極く初期の性能評価モデルにおいては頭には考慮されておらず、ガラス固化体の溶出に伴いこれに対応する量の放射性核種が液相中に放出され移行可能な形態になると仮定されていた。このモデルでは、定常状態における人工バリアからの核種放出率はガラス固化体自体の溶解速度によって律せられるものとなり、このためこのモデルはガラス浸出律速モデルと呼ばれる。しかし、その後の実験研究により、ガラス固化体からの難溶解性元素の溶出速度はガラスの溶解速度と調和的ではないことが明らかになり、現在ではこのモデルは $C_s$ 等の比較的可溶性の元素にのみ適用されている。

上記のガラス浸出律速モデルは、難溶解性であるアクチニド元素等ほとんどの主要な評価対象放射性元素に対して過剰に保守的な結果を与えることから、これに代わって考案されたものがいわゆる溶解度限界放出モデルである。このモデルは、ガラスから調和的 (congruent) に液相に放出された放射性元素の濃度が、当該元素自体の溶解度によって制限

されることを仮定した物である。つまりここでは、ガラスから放出された放射性元素の溶解度に対する過剰分が瞬時に沈澱するものとして定式化が行われている。このモデルは、上記のガラス浸出律速モデルを難溶解性元素の溶出挙動に適用することに含まれる過度の保守性を排除し、かつ、溶解度という濃度上限を用いることから常に保守的なものと考えられてきた。しかし、最近の研究では、この溶解度限界モデルの保守性について疑問の余地があることが示されている。ここでの疑問点は、上記のモデル化の過程において下線を施した箇所、即ち過剰な放射性元素の沈澱生成の瞬時性である。

一般に、閉鎖系においては十分に時間を経た後には系の状態は自由エネルギーを最小化する方向つまり化学的な平衡状態へと向かうが、開放系においてはこれは当てはまらず、系の状態変化はエントロピーを最小化する方向つまりこの場合は全ての化学反応と物質移動とがバランスする定常状態へと向かうことが知られている[Prigogine and Defay, 1954]。従って、極めて小さいながらも系外への拡散フラックスを有する人工バリアシステムにおいては、厳密にはガラスから放出された放射性元素の濃度は化学平衡である溶解度ではなく、関連する化学反応（溶解・沈澱）と物質移動フラックスとがバランスする定常状態へと向かわなくてはならない。この点から言えば、溶解度限界モデルにおいて沈澱生成が瞬時のうちに生じるとした仮定は、ある種の近似であることがわかる。またさらに、溶解限度が低く、かつ溶解・沈澱反応速度が遅いケースに対し溶解度限度モデルを適用した場合は過飽和状態を無視することによって非保守的な評価になることもある。このことは、難溶解性元素のガラスからの溶出に関しては、溶解度は定常状態における濃度の上限ではなく、むしろ下限を与える物であることが明らかである。非保守側にある溶解度限界モデルの仮定がそれでもなお性能評価において使用できるのは、過飽和の程度が無視し得る程度に小さい場合に限られる。以上の議論から、溶解度限界モデルの成立性については、分子拡散による物質移動に比して沈澱生成が十分に速いプロセスであるか否かを検証することが必要であり、このためには溶解・沈澱反応を速度論的に取り扱うことが不可欠ということになる。

Takase等(Takase and Grindrod, 1994)は、以上の経緯を踏まえ、溶解・沈澱反応を簡単な一次反応速度式によって表現した数学モデルを作成し、このモデルを用いた感度解析を実施している。この結果、溶解度の小さい $T_c$ 等では、反応速度定数が $10(1/yr)$ を下回るようになると溶解度限界モデルによる非保守性の程度は無視し得ないほど大きくなることが明らかとなっている。また、反応速度定数の値を広範に変化させた結果、大きい値では核種の溶出速度は溶解度限界モデルによる計算結果に漸近していき、逆に小さい値ではガラス

浸出律速モデルによる計算結果に漸近していくことが示されている。

実際の処分場条件において溶解度限界が十分良い近似となるか否かについては、各元素の溶解・沈澱に関する速度論的なデータを集積することが必要であり、これには今後の研究開発を要すると考えられるが、本研究では、高瀬等のモデルが速度定数をパラメータとして従来の二つのモデル（溶解度限界モデルとガラス浸出律速モデル）、さらにこれらの二つの中間に位置する他の仮定を包含し得るものであるという特性に着目し、このモデルを核種溶解・沈澱挙動のモデルとして採用することとする。具体的には、次式を考えることとする。

$$R = \mu(c - c^*) H[H(c - c^*) + H[s]] \quad (6)$$

但し、

R; 沈澱反応速度

c; 液相化学種濃度

c\*; 溶解度

s; 固相化学種（沈澱）濃度

$\mu$ ; 反応速度定数

H[.]; Heaviside ステップ関数

高瀬等のモデルにおいては、溶解・沈澱反応は各放射性元素について一つずつしか考えられていない。しかし、実際にはほとんどの放射性元素は複数の固相化学種を沈澱として形成するものと考えられており（動燃事業団、1992）、特に、溶解度は高いが生成速度の比較的大きい準安定相（水酸化物等）と、生成速度は小さいが溶解度の低い安定相（酸化物等）とは、実効的な溶解度制限固相として競合する可能性があるため、これら二種類の溶解・沈澱反応を各元素について考慮することとする。

このような複数の沈澱を考える場合には、二つのモデル化オプションが考えられる。一つは、準安定相として生じた沈澱が直接的（固相-固相変化として）には安定相へと変化せず、あくまで一旦液相に溶解してから安定相として沈澱するというオプションであり、もう一つは準安定相が直接的にそして不可逆に安定相へと変化し得るというオプションである。そこで、本研究では、前者を基本モデルとし、後者を結晶化モデル（代替モデル）としていずれも考慮するものとする。モデルの形式としては、準安定相のうち一定の割合で安定相へと変化するという最も簡単な以下のモデルを考えることとする。

$$R_{\text{crystal}} = - \mu_{\text{crystal}} S_{\text{metastable}} \quad (7)$$

但し、

$R_{\text{crystal}}$  ; 結晶化速度

$\mu_{\text{crystal}}$  ; 結晶化反応速度定数

$S_{\text{metastable}}$  ; 準安定相濃度

### 1.2.3 コロイド生成・移行挙動

コロイドは、液相化学種濃度が過飽和にある場合には多かれ少なかれ生ずる物と考えられ[中垣・福田、1993]、コロイドの寄与は潜在的に拡散可能な核種量を増大させ得るものではあるが、緩衝材として用いられるベントナイトの微小空隙中を移行できる可能性は小さいと考えられており[Andersson et al., 1993]、このため、本研究では基本ケースとしてはコロイド生成・移行を考慮しない物とする。ただし、代替ケースとしてはコロイド生成・移行の有する潜在的な重要性を見るために解析に含めることとする。コロイドの種類としては、昨年度の解析においてより重要性の高いと考えられた真性コロイドに優先順位を与えることとし、疑似コロイドについての検討は次年度以降に行うこととした。以下、代替的な解析としてコロイドを考慮する際のモデル化オプションについてまとめる。

ワイマルンの法則によれば、コロイドが生成されるためには系は液相濃度に関して多少なりとも過飽和でなければならず、コロイド粒子の大きさGは、

$$G = K \left( \frac{c - c^*}{c^*} \right)^{-n} \quad (8)$$

但し、K, n; 定数

という様に過飽和の程度が増す程小さくなる。ここで、通常の場合にはnは1近傍にある。また、最初に生じた核がコロイドとして成長する際の速度Vは、

$$V = DA \frac{c - c^*}{\delta} \quad (9)$$

但し、  
 D; 液相化学種の分子拡散係数  
 A; コロイド粒子の表面積  
 $\delta$ ; 拡散層厚さ

として拡散層を通じた液相化学種の移動律速による一次反応型のモデルで表現されることが知られている[中垣・福田、1993]。これらをまとめれば、巨大なコロイド粒子は恐らくはベントナイトの微小空隙において濾過あるいは捕捉されてしまうことを考えれば、本研究の解析においては過飽和の程度が大きい場合に比較的速やかに生じる小規模のコロイドの移行問題の重要性が高いと考えられる。そこでここではコロイド生成・解離として、移行可能な（比較的小さい）コロイド生成のための下限濃度 $c^*_{\text{colloid}} (>c^*)$ を考え、核種の液相濃度がこの下限濃度を越えた分については速やかに（瞬時に）当該コロイドへと遷移するものと仮定する。また、逆に、核種の液相濃度がこの下限濃度を下回った場合、瞬時にコロイドは解離するものとする。

次に、生成したコロイド移行の遅延については、対象とするコロイドのサイズが小さいことから、基本モデルとしては通常のコロイドについての吸着と同じ線形・可逆の吸着モデルを考えることとする。ただし、既に述べた様にコロイドについては限外濾過や凝集による沈澱といった不可逆なプロセスも考えられ、かつ、ここで評価対象とする比較的小さなコロイド粒子についてこれらの不可逆な捕捉がどの程度の影響を与えるかについては知見が極めて限られているため、代替モデルとして不可逆捕捉モデルも考慮することとした。具体的なモデルとしては、最も簡単に、ある一定の割合（捕捉確率）によって不可逆な遅延が生じることを仮定して捕捉速度 $R_{\text{trap}}$ を、

$$R_{\text{trap}} = -\mu_{\text{trap}} c_{\text{colloid}} \quad (10)$$

但し、  
 $\mu_{\text{trap}}$ ; 捕捉速度定数  
 $c_{\text{colloid}}$ ; コロイド濃度

と表現した代替モデルを考えることとする。



以上、人工バリア中核種移行挙動に関するモデル化オプションの全体を表1.2.3-1 にまとめる。

表1.2.3-1 人工バリア中核種移行挙動に関するモデル化オプションのまとめ

	基本モデル	代替モデル
ガラス溶解・核種溶出	シリカ濃度と飽和濃度との差による一次反応及び残存反応率の和としてガラス溶解速度をモデル化。核種溶出はcongruentであるとし、シリカ濃度は緩衝材中の石英等の反応により常に飽和濃度に保たれることを仮定（残存反応のみの寄与）	鉄とシリカの共沈によりシリカ供給と消費（共沈）の速度論的バランスに応じてシリカ濃度が不飽和となることを考慮。不飽和の程度に応じて左記モデルの第一項の寄与が顕在化。
核種溶解・沈澱	溶解・沈澱反応を一次反応速度式としてモデル化。生成する沈澱としては、安定相と準安定相の二種類を考慮。ただし、準安定相は液相を介してしか安定相へと変化しない。	準安定相から安定相への直接的かつ不可逆な変化（結晶化）を考慮。
コロイド生成・移行 （基本ケースでは考慮せず）	移行可能な程度に小規模であり従って超過飽和において速やかに生じるコロイドに着目し、その下限濃度を超えた分は全て瞬時にコロイドとなる（可逆）ことを仮定したモデル。遅延については瞬時・可逆の吸着のみ考慮。	遅延機構として、濾過・凝集による沈澱等の不可逆な捕捉が一定割合で生じるとしたモデル。

## 2. 広義拡散方程式

昨年度の研究においては、広義拡散方程式を核とした数学的な取り扱いに基づく、新たな核種移行解析の手法の開発といくつかの例題に関する計算を実施した。この方法は、核種の様々な形態間に化学的な平衡関係が常に成立していることを前提として、核種全濃度について広義拡散係数を用いた偏微分方程式を解き、さらにその結果を平衡関係についてのpartitioningの規則を記述する代数方程式によって個々の化学形態に割り付けるという簡便な手法を用いた物であった。この手法を、合計400ケースの問題に対して適用することによって、これが人工バリアについての性能評価に対する有効な解析手法となり得ることが示された。

以上の成果を受け、本年度の研究としては、この手法を拡張することにより、以下の諸事項への対応を可能とすることを目標とする。

- ・ ガラス溶解を考慮したより現実的なソースターム
- ・ 崩壊連鎖
- ・ 溶解、沈澱反応についての速度論的な表現

このような改良を施すことにより、評価レベルの問題及び研究開発の対象となる個別事象の双方についてより密接に関連した解析を行うことが可能となるはずである。

本節では、上記の諸点に対応した改良と拡張についてまとめる。なお、ここでは、溶解度、反応速度定数等の変数については時間及び位置についての任意の連続関数として記述を進める。これらの変数の具体的な関数形の定義については、後節（各シナリオについてのシャドウ関数の作成）でまとめることとする。

### 2.1 広義拡散方程式の一般形

#### 2.1.1 速い反応の表現

ここでは、まず、任意の環境条件で任意数の異なる移行形態を有する放射性元素の移行問題を各移行形態毎の方程式系として導き、更に、これらの移行形態間の遷移がいずれも瞬時のうちに生じる”速い反応”であった場合に、もとの方程式系を全濃度についての

単一の方程式に統合する方法についてまとめる。なお、ここでは簡単のため崩壊連鎖は考慮しないこととする。

複数の移行形態がそれぞれ異なる拡散係数を有しており、一つの放射性元素の全量が拡散係数をパラメータとして分布している状態を考える（詳細については昨年度報告書参照）。この時、一般の分布形について、拡散係数Dをもつ移行形態にある放射性元素の濃度が位置x、時刻tにおいて $c(x,t,D)$ であるとする。ここで、この移行形態にあるmassが化学反応等により他の移行形態に遷移しつつ分子拡散により移動する場合、物質収支式は、

$$(\theta c)_t = \nabla \cdot (\theta D \nabla c) - \sigma(c) - \lambda \theta c \quad (1)$$

但し、

$\theta$  ; 媒体の空隙率

$\sigma$  ; 他の移行形態との間の化学反応等による

質量の交換フラックス

$\lambda$  ; 崩壊定数

と表現される。ここで、 $\sigma(c)$ は線形ないしは非線形の反応項である。

(1)式は、各移行形態に対応する拡散係数Dの位置依存性がないことを仮定すると次の様  
に書き換えることができる。

$$(\theta c)_t = \nabla \cdot (\theta \nabla (Dc)) - \sigma(c) - \lambda \theta c \quad (2)$$

そこで、拡散係数Dについて積分を実施して全濃度Cを、

$$C_{(x,t)} = \int c_{(x,t,D)} dD \quad (3)$$

と定義すると、(2)式のDについての積分は、全濃度Cについての偏微分方程式として以

下の様に定式化される。

$$(\theta C)_t = \nabla \cdot (\theta \nabla (\alpha C)) - \theta \lambda C \quad (4)$$

但し、 $\alpha = \alpha(x, t, C)$  は、次式で定義される平均拡散係数であり、本研究ではこれを広義拡散係数、(4) 式を広義拡散方程式と呼ぶ。

$$\alpha = \frac{\int Dc \, dD}{\int c \, dD} \quad (5)$$

以上の全濃度方程式への統合は、遅い反応についても速い反応についても常に成立するものである。しかしながら、広義拡散方程式(4) は二つの未知数 $C$ 、及び  $\alpha$  を有するため不定であり、これは(5) 式により  $\alpha$  が  $x, t$ 、及び  $C$  の関数として明示的に書かれる場合にのみ一意の解を計算することができる。従って、速い反応については、常に平衡関係が成立しており(5) 式の右辺が  $x, t$ 、及び  $C$  の代数表現として与えられることから、この様なプロセスによる移行形態間の遷移を伴う移行問題を解く場合には、まず(4)式を解いて全濃度  $C$  についての解を求め、その後これを(5)式によって各移行形態毎の濃度に再配分するという簡便な手法を用いることができる。後述する様に、本モデルを汎用DAEソーバSPADE上でプログラムする際には、任意の速い反応を考えたシナリオにおいて共通部分である(4) 式を核として、個々のプロセス毎に異なるダミー変数  $\alpha$  の代数表現の具体形を適宜入力して計算を実行するという手順が採られる。

## 2.1.2 遅い反応の表現

2.1.1に述べた方法では、(5)式が  $\alpha$  に関する代数表現として明示されることが必須であるが、化学反応の速度論的な進展を考慮する必要のある程遅い反応については系は常に平衡状態にあるとは限らず、この様な代数表現は一般には見出すことができない。そこで、各移行形態を、相互に速い反応で関係づけられたものと、それ以外のものとの区分し、速度論的反応項を考慮する必要のあるものについてはそれぞれ個別に方程式をたてる必要がある。つまり、相互に速い反応で関係づけられた移行形態の全濃度を  $C$  とし、これらのうちのいずれかの移行形態と遅い反応  $R$  で関係づけられた移行形態を  $s$  とすると、次の様な

連立方程式系を解くこととなる。

$$\begin{aligned}(\theta C)_t &= \nabla \cdot (\theta \nabla \alpha C) - \lambda \theta C - R \\ (\theta s_t)_t &= \nabla \cdot (\theta D^s \nabla s) - \lambda \theta s + R\end{aligned}\tag{6}$$

但し、

$D^s$ ; 移行形態 $s$ の拡散係数（沈澱、吸着等の場合は0）

ここで、反応項 $R$ の具体的な形式は対象とするプロセスによってそれぞれ異なるため、上の $\alpha$ と同様に(6)式を広義拡散方程式として共通にプログラミングし、 $R$ についての代数表現は考えるシナリオ毎に入力するという形で解析を実施する。

## 2.2 反応速度項を含んだ広義拡散方程式の人工バリア中核種移行問題への適用

### 2.2.1 人工バリア形状

解析対象とする人工バリアの形状・寸法を下図に示す。簡単のため、諸物性は原点を中心として対称であるものと仮定し、これと対応して円筒座標系一次元で問題の定式化を行う。

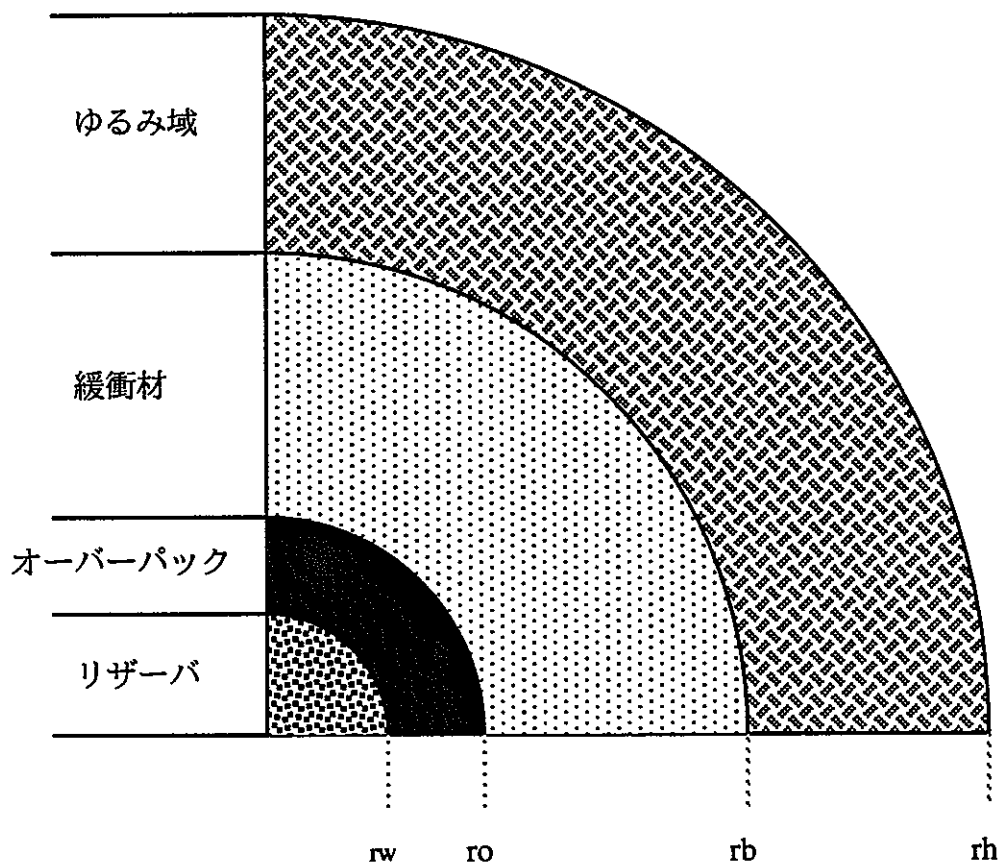


図2.2.1-1 人工バリアの形状

## 2.2.2 数学的定式化

ここでは、2.2.1に述べた広義拡散方程式を、3メンバーの崩壊連鎖を含む人工バリア中移行問題に適用する。このために、人工バリアシステムをリザーバ、オーバーパック+緩衝材、及びゆるみ域の3つの領域に区分し各箇所での方程式系を以下に定式化する。ここでの定式化は、各シナリオについて共通して用いることのできるようダミー変数 $\alpha$ 、反応項R、及び環境条件に依存するパラメータの位置・時間の関数形については一般形として取り扱う。これらの具体的な形式については3.及び4.を参照されたい。

また、明示的に扱われる遅い反応としては放射性元素について安定相及び準安定相、シリカについてはアモルファスシリカと鉄-シリカ共沈とを考慮することとする。なお、沈殿した放射性核種の崩壊によって生じる娘核種の形態は同種の（つまり安定相であれば安定相の、準安定相であれば準安定相の）沈殿であるとして定式化した。しかし実際には同じ準安定相であっても水酸化物とアモルファス等異なる化学種である場合があるため、選定された放射性元素に即してこの箇所は調整する必要がある。この点については、3.において具体例における取扱いを説明することとする。

### 2.2.2.1 リザーバ

リザーバは、ガラス固化体を含むオーバーパック内側の領域であり、ここではガラス固化体の溶解に伴い各核種が congruent に溶出することを想定する。溶出した放射性元素及びシリカは、それぞれの溶解度に関して過飽和となった場合には所定の反応速度をもってリザーバ中で沈殿を生成する。従って、引き続くオーバーパック及び緩衝材中での物質移動の内側境界条件となるリザーバ中の濃度は非平衡であることが許容されることとなる。また、シリカ及び核種量について、ガラス固化体中に残存する量と一旦溶出してリザーバ内にとどまる量に関して、リザーバ外への放出と放射性壊変を考慮して物質収支式を立式する。従って、この領域における支配方程式として、以下の常微分方程式群を得る。

ガラス固化体中残存量及び核種インベントリ



$$\begin{aligned}
\frac{dG}{dt} &= -R_G, \\
\frac{dI^{(1)}}{dt} &= -\lambda_1 I^{(1)} - R_G \frac{I^{(1)}}{G}, \\
\frac{dI^{(2)}}{dt} &= -\lambda_2 I^{(2)} + \lambda_1 I^{(1)} - R_G \frac{I^{(2)}}{G}, \\
\frac{dI^{(3)}}{dt} &= -\lambda_3 I^{(3)} + \lambda_2 I^{(2)} - R_G \frac{I^{(3)}}{G}.
\end{aligned}
\tag{7}$$

但し、

$G$ ; ガラス残存量 [g]

$R_g$ ; ガラス溶解速度 [ $g \cdot yr^{-1}$ ]

$I^{(i)}$ ; 核種  $i$  のインベントリ [mol]

$\lambda_i$ ; 核種  $i$  の崩壊定数 [ $yr^{-1}$ ]

であるとする。

初期条件

$$\begin{aligned}
G_{(0)} &= G_0, \\
I_{(0)}^{(1)} &= I_0^{(1)}, I_{(0)}^{(2)} = I_0^{(2)}, I_{(0)}^{(3)} = I_0^{(3)}.
\end{aligned}
\tag{8}$$

リザーバ中のシリカ及び核種濃度

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t}(\phi_R V_R U_R^{Si}) &= R_G + A_R \phi_{(r_w)} \left. \frac{\partial(\alpha^{Si} U^{Si})}{\partial r} \right|_{r=r_w} - \phi_R V_R \{R_R^{amSi} + R_R^{feSi}\}, \\
\frac{\partial}{\partial t}(\phi_R V_R U_R^{(i)}) &= R_G \frac{I^{(i)}}{G} + A_R \phi_{(r_w)} \left. \frac{\partial(\alpha^{(i)} U^{(i)})}{\partial r} \right|_{r=r_w} \\
&\quad - \phi_R V_R \{R_R^{hy(i)} + R_R^{ox(i)}\} - \phi_R V_R \lambda_i U_R^{(i)} + \phi_R V_R \lambda_{i-1} U_R^{(i-1)}, \\
\frac{\partial}{\partial t}(\phi_R V_R V_R^{amSi}) &= \phi_R V_R R_R^{amSi}, \\
\frac{\partial}{\partial t}(\phi_R V_R V_R^{feSi}) &= \phi_R V_R R_R^{feSi}, \\
\frac{\partial}{\partial t}(\phi_R V_R V_R^{hy(i)}) &= \phi_R V_R R_R^{hy(i)} - \phi_R V_R \lambda_i v_R^{hy(i)} + \phi_R V_R \lambda_{i-1} v_R^{hy(i-1)}, \\
\frac{\partial}{\partial t}(\phi_R V_R V_R^{ox(i)}) &= \phi_R V_R R_R^{ox(i)} - \phi_R V_R \lambda_i v_R^{ox(i)} + \phi_R V_R \lambda_{i-1} v_R^{ox(i-1)}.
\end{aligned} \tag{9}$$

但し、

$V_R$ ; リザーバ容積 [m<sup>3</sup>]

$\phi_R$ ; リザーバ空隙率 [-]

$A_R$ ; リザーバ表面積 [m<sup>2</sup>]

$R_R^{amSi}$ ; アモルファスシリカの溶解・沈澱速度 [g\*m<sup>-3</sup>\*yr<sup>-1</sup>]

$v_R^{amSi}$ ; アモルファスシリカ濃度 [g\*m<sup>-3</sup>]

$R_R^{feSi}$ ; 鉄シリカ共沈速度 [g\*m<sup>-3</sup>\*yr<sup>-1</sup>]

$v_R^{feSi}$ ; ケイ化鉄濃度 [g\*m<sup>-3</sup>]

$U_R^{Si}$ ; シリカ濃度 [g\*m<sup>-3</sup>]

$U_R^{(i)}$ ; 速い反応に寄与する核種  $i$  の濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

$U^{(i)}$ ; オーバーパック+緩衝材領域中速い反応に寄与する核種  $i$  濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

$v_R^{ox(i)}$ ; 核種  $i$  の酸化物 (固相) 濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

$v_R^{hy(i)}$ ; 核種  $i$  の水酸化物 (固相) 速い反応に寄与する濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

$R_R^{ox(i)}$ ; 核種  $i$  の酸化物溶解・沈澱速度 [g\*m<sup>3</sup>\*yr<sup>-1</sup>]

$R_{R^{hy(i)}}$ ; 核種 $i$ の水酸化物溶解・沈澱速度 [ $g \cdot m^3 \cdot yr^{-1}$ ]

であるとする。

### 初期条件

$$\begin{aligned} U_{R(0)}^{Si} &= U_{R0}^{Si}, v_{R(0)}^{amSi} = 0, v_{R(0)}^{feSi} = 0, \\ U_{R(0)}^{(i)} &= 0, v_{R(0)}^{hy(i)} = 0, v_{R(0)}^{ox(i)} = 0. \end{aligned} \quad (10)$$

### 2.2.2.2 緩衝材及びオーバーパック領域

緩衝材とオーバーパックの間には、初期には明確な境界が存在する。しかしながら、時間の経過とともに双方向の物質移動によってこの境界は曖昧な物となる可能性があるため、ここではこれら二つの領域を同時に考えることとし、これらの材料の相違は物性値（時間及び空間の関数となる）の相違として表現されることとなる。ここでの広義拡散方程式は、以下の形式のものとなる。

### 支配方程式

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi U^{Si}}{\partial t} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \phi r \frac{\partial (\alpha^{Si} U^{Si})}{\partial r} \right\} - \phi R^{amSi} - \phi R^{feSi}, \\ \frac{\partial \phi U^{(i)}}{\partial t} &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ \phi r \frac{\partial (\alpha^{(i)} U^{(i)})}{\partial r} \right\} - \phi R^{hy(i)} - \phi R^{ox(i)} - \phi \lambda_i U^{(i)} + \phi \lambda_{i-1} U^{(i-1)}, \\ \frac{\partial \phi v^{amSi}}{\partial t} &= \phi R^{amSi}, \\ \frac{\partial \phi v^{feSi}}{\partial t} &= \phi R^{feSi}, \\ \frac{\partial \phi v^{hy(i)}}{\partial t} &= \phi R^{hy(i)} - \phi \lambda_i v^{hy(i)} + \phi \lambda_{i-1} v^{hy(i-1)}, \\ \frac{\partial \phi v^{ox(i)}}{\partial t} &= \phi R^{ox(i)} - \phi \lambda_i v^{ox(i)} + \phi \lambda_{i-1} v^{ox(i-1)}. \end{aligned} \quad (11)$$

但し、

$\phi$ ; 緩衝材及びオーバーパックスの空隙率 [-]

$\alpha_Y$ ; 速い反応に寄与する物質Yの広義拡散係数 [ $m^2 \cdot yr^{-1}$ ]

$U_Y$ ; 速い反応に寄与する物質Yの全濃度 [ $mol \cdot m^{-3}$ ]

$v_Z$ ; 固相Zの濃度 [ $mol \cdot m^{-3}$ ]

$R_Z$ ; 固相Zの溶解・沈澱速度 [ $mol \cdot m^{-3} \cdot yr^{-1}$ ]

であるとする。

#### 内側境界条件

$$\begin{aligned}\alpha_{(r_w)}^{Si} U_{(r_w)}^{Si} &= \alpha_R^{Si} U_R^{Si}, \\ \alpha_{(r_w)}^{(i)} U_{(r_w)}^{(i)} &= \alpha_R^{(i)} U_R^{(i)}.\end{aligned}\tag{12}$$

#### 外側境界条件

$$\begin{aligned}\alpha_{(r_b)}^{Si} U_{(r_b)}^{Si} &= \alpha_D^{Si} U_D^{Si}, \\ \alpha_{(r_b)}^{(i)} U_{(r_b)}^{(i)} &= \alpha_D^{(i)} U_D^{(i)}.\end{aligned}\tag{13}$$

但し、

$\alpha_{D^Y}$ ; ゆるみ域内での速い反応に寄与する物質Yの広義拡散係数 [ $m^2 \cdot yr^{-1}$ ]

$U_{D^Y}$ ; ゆるみ域内での速い反応に寄与する物質Yの全濃度 [ $mol \cdot m^{-3}$ ].

#### 初期条件

$$\begin{aligned}U_{(0,x)}^{Si} &= U_{0(x)}^{Si}, \\ v_{(0,x)}^{amSi} &= v_{0(x)}^{amSi}, \\ v_{(0,x)}^{feSi} &= 0, \\ U_{(0,x)}^{(i)} &= 0, \\ v_{(0,x)}^{hy(i)} &= 0, \\ v_{(0,x)}^{ox(i)} &= 0.\end{aligned}\tag{14}$$

### 2.2.2.3 ゆるみ域

ゆるみ域においては、緩衝材から分子拡散により放出された放射性核種及びシリカが浸入する地下水と完全に混合されることを仮定したいわゆるmixing cellモデルを用いる。また、化学形態間の核種の配分に係る諸プロセスは、この領域においても作用するものと仮定する。

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D U_D^S) = -A\phi_{(r_b)} \frac{\partial (\alpha^S U^S)}{\partial r} \Big|_{r=r_b} \\
 & -\phi_D V_D \{R_D^{amSi} + R_D^{feSi}\} - Q \{\delta_D^S U_D^S - \delta_G^S U_G^S\}, \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D U_D^{(i)}) = -A\phi_{(r_b)} \frac{\partial (\alpha^{(i)} U^{(i)})}{\partial r} \Big|_{r=r_b} \\
 & -\phi_D V_D \{R_D^{hy(i)} + R_D^{ox(i)}\} - Q \{\delta_D^{(i)} U_D^{(i)} - \delta_G^{(i)} U_G^{(i)}\} - \phi_D V_D \lambda_i U_D^{(i)} + \phi_D V_D \lambda_{i-1} U_D^{(i-1)}, \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{amSi}) = \phi_D V_D R_D^{amSi}, \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{feSi}) = \phi_D V_D R_D^{feSi}, \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{hy(i)}) = \phi_D V_D R_D^{hy(i)} - \phi_D V_D \lambda_i v_D^{hy(i)} + \phi_D V_D \lambda_{i-1} v_D^{hy(i-1)}, \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\phi_D V_D v_D^{ox(i)}) = \phi_D V_D R_D^{ox(i)} - \phi_D V_D \lambda_i v_D^{ox(i)} + \phi_D V_D \lambda_{i-1} v_D^{ox(i-1)}.
 \end{aligned} \tag{15}$$

但し、

$V_D$ ; ゆるみ域容積 [m<sup>3</sup>]

$\phi_D$ ; ゆるみ域空隙率 [-]

$Q$ ; ゆるみ域内地下水流量 [m<sup>3</sup>\*yr<sup>-1</sup>]

$\delta_D^S$ ; ゆるみ域におけるSi全濃度に対するSi可動成分濃度割合[-]

$\delta_G^{Si}$ ; 地下水におけるSi全濃度に対するSi可動成分濃度割合[-]

$U_{DY}$ ; ゆるみ域内速い反応に寄与する物質Yの全濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

$U_{GY}$ ; 浸入地下水中速い反応に寄与する物質Yの全濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

A; 緩衝材外側表面積[m<sup>2</sup>]

$v_{DZ}$ ; ゆるみ域内固相Z濃度 [mol\*m<sup>-3</sup>]

$R_{DZ}$ ; ゆるみ域内固相Z溶解・沈澱速度 [mol\*m<sup>-3</sup>\*yr<sup>-1</sup>]

であるとする。

### 初期条件

$$\begin{aligned}U_{D(0)}^{Si} &= U_{D0}^{Si}, \\v_{D(0)}^{amSi} &= v_{D0}^{amSi}, \\v_{D(0)}^{feSi} &= 0, \\U_{D(0)}^{(i)} &= 0, \\v_{D(0)}^{hy(i)} &= 0, \\v_{D(0)}^{ox(i)} &= 0.\end{aligned}\tag{16}$$

### 2.2.2.4 崩壊連鎖の取扱

2.2.2.1~2.2.2.3に述べた方程式系を解くにあたっては、この方程式系の係数行列の各成分が同様の大きさを持ちしたがって固有値が1の近傍にあるようにした場合に反復計算の収束性が飛躍的に向上するものとなる。逆に、未知数のうちの 하나가他よりも格段に小さい場合にはこの行列はsingular となり計算効率が著しく低下する（付録2 第一部参照）。

崩壊連鎖を含む移行問題を解法する際には、比較的短半減期の核種と長半減期の核種とが混在するため、長時間を経た後には係数行列が数十桁異なる成分を有するものとなり計算の効率が低下する。例えば、Am-241 系列では、Np-237 のインベントリが枯渇するまでにAm-241 の減衰は100桁以上になってしまう。そこで、本解析では、各核種の濃度を

自分と親核種（複数）のうち最も半減期の長いものの崩壊分を補償するようにrescaleした新たな変数に定義し直して定式化する。

具体的には、3.以降の解析対象とするAm-241; Np-237; U-233の系列について本来の移行方程式が、

$$\begin{aligned}\frac{\partial c^{Am}}{\partial t} &= \mathcal{Q}c^{Am} - R^{Am}(c^{Am}) - \lambda_{Am}c^{Am}, \\ \frac{\partial c^{Np}}{\partial t} &= \mathcal{Q}c^{Np} - R^{Np}(c^{Np}) + \lambda_{Am}c^{Am} - \lambda_{Np}c^{Np}, \\ \frac{\partial c^U}{\partial t} &= \mathcal{Q}c^U - R^U(c^U) + \lambda_{Np}c^{Np} - \lambda_Uc^U.\end{aligned}$$

但し、

$\mathcal{Q}$ ; 物質移動についての偏微分演算子

R; 反応項

c; 各核種濃度

である場合、

$$\begin{aligned}\hat{c}^{Am} &= \exp(\lambda_{Am}t)c^{Am}, \\ \hat{c}^{Np} &= \exp(\lambda_{Np}t)c^{Np}, \\ \hat{c}^U &= \exp(\lambda_{Np}t)c^U.\end{aligned}$$

というrescalingを行うことによって、新たな方程式系、

$$\begin{aligned}\frac{\partial \hat{c}^{Am}}{\partial t} &= \mathcal{Q}\hat{c}^{Am} - R^{Am}(\hat{c}^{Am}), \\ \frac{\partial \hat{c}^{Np}}{\partial t} &= \mathcal{Q}\hat{c}^{Np} - R^{Np}(\hat{c}^{Np}) + \lambda_{Am} \exp((\lambda_{Np} - \lambda_{Am})t)\hat{c}^{Am}, \\ \frac{\partial \hat{c}^U}{\partial t} &= \mathcal{Q}\hat{c}^U - R^U(\hat{c}^U) + \lambda_{Np}\hat{c}^{Np} + (\lambda_{Np} - \lambda_U)\hat{c}^U.\end{aligned}$$

へと書き直される。この方程式系は、本来の方程式と異なり、減衰することなく常に各方

へと書き直される。この方程式系は、本来の方程式と異なり、減衰することなく常に各方程式がほぼ同じオーダーにあることが保証されることとなる。

U-233 について、他と異なり自分自身の崩壊定数でrescaleしていない理由は上の第2式を見れば明らかである。つまり、もしU-233をNp-237と同様にrescaleした場合、 $+\lambda_{Np} \exp(\lambda_U - \lambda_{Np})t \hat{c}_{Np}$  という項が現れるが、この指数関数の中は常に正であり、従って時間の経過とともに発散するためである。Np-237の場合には、Am-241の半減期がNp-237よりも短いために指数関数の中は負でありこの様な事態は生じない。



### 3. 核種移行挙動についての感度解析

本章では、2.において定式化した反応速度項付き広義拡散係数の一般形にダミー変数と反応速度項の具体的な代数表現を与えることによって種々のシナリオに対応した核種移行モデルを定義し、これらを用いた感度解析を実施する。解析対象核種としては、3メンバーの崩壊連鎖としてAm-241 ; Np-237 ; U-233 の系列、核分裂生成物として可溶性のCs-135 と難溶解性のTc-99 を考え、基本ケースとしては各難溶解性元素の安定相と準安定相の速度論的な溶解・沈澱、残存反応によるガラス溶解とcongruentな核種溶出、線形・瞬時の核種吸着を考慮することとする。基本ケースに含まれるKd, ガラス浸出率及び溶解・沈澱反応速度という主要パラメータについては、通常の意味での（パラメータの）不確実性に焦点を当てた感度解析を実施する。また、代替ケースとして、真性コロイドの生成・移行、鉄・ガラス共沈によるガラス溶解速度増加、及び結晶化のそれぞれの影響について対応する代数表現を定義して解析を行った。なお、本章での解析は全て環境条件が時間的にも空間的にも一定であることを仮定した。環境条件の変化については4.を参照されたい。

#### 3.1 基本ケースについての解析

##### 3.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

基本ケースとしては、

- ・残存反応によるガラス溶解とcongruentな核種溶出、
- ・線形、瞬時の核種吸着、
- ・安定相、及び準安定相の速度論的な溶解・沈澱、

という三つの主要なプロセスを考え Am-241 系列と核分裂生成物についてそれぞれ崩壊連鎖を含む方程式系と単核種についての方程式系とを定式化した。以下に、このケースに対応するダミー変数及び反応速度項の具体的な代数表現をまとめる。

##### (1) 溶解・沈澱反応の速度式

固相の溶解・沈澱反応についての最も簡単な速度式は、一次反応速度式である。この速度式は、物質移動と化学反応のタイムスケールの比較という最も本質的な点についての検

討を定量的に行うことを可能とするものであるという点で本研究の目的には十分であるとともに、多くの反応について実際の反応の進展を良く近似するものであることが知られている。また、放射性元素についてのより現実的な速度論的データが不足している現状で、より複雑な表現を用いることの妥当性は見あたらない。そこで、本研究では、全ての溶解・沈澱反応に以下の一次速度式を適用することとする。

$$R^x = \mu_x (\beta C - c^*) H[H[\beta C - c^*] + H[X]] \quad (1)$$

但し、

$R^x$ ; 固相Xの溶解・沈澱速度

$\mu_x$ ; 反応速度定数

$\beta$ ; 全濃度のうち溶解・沈澱反応に寄与するものの割合

$C$ ; 速い反応に対応した全濃度

$c^*$ ; Xに関する溶解度（液相濃度）

## (2) ダミー変数

前出の各プロセスに対応して、ダミー変数は以下の様に定義される。

$\alpha$

$$\alpha = \frac{D_{\text{dissolv}} \frac{c}{R_f}}{C} = \frac{D_{\text{dissolv}}}{R_f} \quad (2)$$

$\beta$

$$\beta = \frac{c}{C} = \frac{1}{R_f} \quad (3)$$

$\delta$

$$\delta = \beta \quad (4)$$

但し、Rf; 吸着による遅延係数

$$Rf = 1 + \frac{1 - \phi}{\phi} \rho Kd$$

$\phi$ ; 空隙率

$\rho$ ; 密度

Kd; 分配係数

### 3.1.2 解析条件

各ケースで共通に用いるパラメータ値を表3.1.2-1にまとめる。なお、劣化後のオーバーパック領域（腐食生成物）、及び浸出後のガラス領域については空隙率、密度、分配係数の数値が未知であるため、ここでは緩衝材と同等であることを仮定した。

また、感度解析のために実施した計算ケースと、各ケースにおける変動パラメータ値を表3.1.2-2に示す。

表3.1.2-1 基本ケースにおけるパラメータの標準値(1/2)

<p><u>ガラス固化体仕様</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・半径</li> <li>・高さ</li> <li>・重量</li> <li>・表面積 (外表面積の10倍)</li> </ul>	<p>0.2 m</p> <p>2.47 m</p> <p>405 kg</p> <p>15.1 m<sup>2</sup></p>
<p><u>緩衝材、オーバーパック仕様</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・緩衝材厚さ</li> <li>・オーバーパック厚さ</li> <li>・緩衝材空隙率</li> <li>・密度</li> </ul>	<p>1.0 m</p> <p>0.3 m</p> <p>0.33</p> <p>2700 kg/m<sup>3</sup></p>
<p><u>ゆるみ域仕様</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・厚さ</li> <li>・空隙率</li> <li>・密度</li> </ul>	<p>1.5 m</p> <p>0.1</p> <p>2700 kg/m<sup>3</sup></p>
<p><u>ガラス溶解速度</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ kf</li> <li>・ kr</li> </ul>	<p>1.5 g/m<sup>2</sup>/day</p> <p>5.0 10<sup>-3</sup> g/m<sup>2</sup>/day</p>
<p><u>分子拡散係数</u></p>	<p>0.00946 m<sup>2</sup>/yr</p>

表3.1.2-1 基本ケースにおけるパラメータの標準値(2/2)

<p><u>溶解度</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・アモルファスシリカ</li> <li>・ Am(OH)CO<sub>3</sub></li> <li>・ Np(OH)<sub>4</sub></li> <li>・ NpO<sub>2</sub></li> <li>・ UO<sub>2(am)</sub></li> <li>・ UO<sub>2(cr)</sub></li> <li>・ TcO<sub>2</sub> · 2H<sub>2</sub>O</li> <li>・ TcO<sub>2</sub></li> <li>・ Cs</li> </ul>	<p>7.8 10<sup>-1</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>6.3 10<sup>-5</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>5.5 10<sup>-6</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>2.0 10<sup>-9</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>3.9 10<sup>-2</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>3.9 10<sup>-7</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>3.5 10<sup>-11</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>1.0 10<sup>-15</sup> mol/m<sup>3</sup></p> <p>-</p>
<p><u>分配係数</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ Si</li> <li>・ Am</li> <li>・ Np</li> <li>・ U</li> <li>・ Tc</li> <li>・ Cs</li> </ul>	<p>0</p> <p>10 m<sup>3</sup>/kg</p> <p>0.1 m<sup>3</sup>/kg</p> <p>0.1 m<sup>3</sup>/kg</p> <p>0.001 m<sup>3</sup>/kg</p> <p>0.01 m<sup>3</sup>/kg</p>
<p><u>放射性核種インベントリ</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ Am-241</li> <li>・ Np-237</li> <li>・ U-233</li> <li>・ Tc-99</li> <li>・ Cs-135</li> </ul>	<p>5.54 10<sup>1</sup> g</p> <p>8.36 10<sup>2</sup> g</p> <p>2.46 10<sup>-1</sup> g</p> <p>1.06 10<sup>3</sup> g</p> <p>4.96 10<sup>2</sup> g</p>
<p><u>初期濃度</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ Si濃度</li> <li>・ アモルファスシリカ リザーバー</li> <li>緩衝材、オーバーバック</li> <li>ゆるみ域</li> </ul>	<p>21.8 g/m<sup>3</sup></p> <p>0 kg/m<sup>3</sup></p> <p>600 kg/m<sup>3</sup></p> <p>600 kg/m<sup>3</sup></p>
<p><u>地下水流量</u></p>	<p>1.0 m<sup>3</sup>/y</p>

表3.1.2-2 基本ケースにおける計算ケース設定(1/2)

計算ケース名	変動パラメータ値	対象核種
A-1	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (10, 100)$	Am-241 Np-237 U-233
A-2	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (1.0, 10)$	Am-241 Np-237 U-233
A-3	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.1, 1.0)$	Am-241 Np-237 U-233
A-4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.01, 0.1)$	Am-241 Np-237 U-233
B-1 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (10, 100)$ ガラス表面積；標準値x10 Am 分配係数；標準値x 0.1 Np 分配係数；標準値x 0.1 U 分配係数；標準値x 0.1	Am-241 Np-237 U-233
B-2 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (1.0, 10)$ ガラス表面積；標準値x10 Am 分配係数；標準値x 0.1 Np 分配係数；標準値x 0.1 U 分配係数；標準値x 0.1	Am-241 Np-237 U-233
B-3 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.1, 1.0)$ ガラス表面積；標準値x10 Am 分配係数；標準値x 0.1 Np 分配係数；標準値x 0.1 U 分配係数；標準値x 0.1	Am-241 Np-237 U-233
B-4 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.01, 0.1)$ ガラス表面積；標準値x10 Am 分配係数；標準値x 0.1 Np 分配係数；標準値x 0.1 U 分配係数；標準値x 0.1	Am-241 Np-237 U-233

\*  $(\mu_{st}, \mu_{ms})$  ; (安定相の溶解・沈澱反応速度定数、準安定相の溶解・沈澱反応速度定数)

単位(yr<sup>-1</sup>)

表3.1.2-2 基本ケースにおける計算ケース設定(2/2)

ケース名	変動パラメータ値	対象核種
C-1	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (10, 100)$	Tc-99
C-2	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (1, 10)$	Tc-99
C-3	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.1, 1)$	Tc-99
C-4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.01, 0.1)$	Tc-99
D-1 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (10, 100)$ ガラス表面積; 標準値x10 KdTc; 標準値x0.1	Tc-99
D-2 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (1, 10)$ ガラス表面積; 標準値x10 KdTc; 標準値x0.1	Tc-99
D-3 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.1, 1)$ ガラス表面積; 標準値x10 KdTc; 標準値x0.1	Tc-99
D-4 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.01, 0.1)$ ガラス表面積; 標準値x10 KdTc; 標準値x0.1	Tc-99

### 3.1.3 結果

3.1.2にまとめた各ケースについての解析結果を以下にまとめる。

#### (1) 反応速度定数の影響

他のパラメータを全て標準値として、安定相及び準安定相の溶解・沈澱反応速度定数をそれぞれ0.01~10、0.1~100と変化させたA-1~A-4について、液相濃度、安定相（固相）、準安定相（固相）濃度プロファイルの経時変化を図3.1.3-1に示す。なお、沈殿物の生成/消滅による計算の振動を避けるために沈澱濃度 $10^{-5}$  mol/m<sup>3</sup>以下は無視している。

いずれのケースにおいてもNp-237については準安定相及び安定相が生じている。これらの沈澱は、ガラスからの溶出が継続する期間（約6,500年）において外側に向けて発達し（過飽和）、その後液相濃度の低下による不飽和状態の出現と共に後退している。また、最も反応速度定数の大きいA-1ケースでは準安定相、安定相ともにゆるみ域までは到達しておらずこのケースでは瞬時平衡を仮定した溶解度限界モデルが良い近似となっている。これに対して、より反応速度定数の小さいケースA-2, 及びA-3では準安定相は緩衝材中に留まっているが、安定相はゆるみ域にまで到達しており溶解度限界モデルとの差異が顕著である。さらに、最も反応速度定数の小さいケースA-4では、準安定相についてもゆるみ域まで到達しており、この条件では溶解度制限固相が事実上存在していないことを示している。

上記に対して、Am-241についてはいずれのケースでも沈澱が形成されていない。これは、Amのインベントリが比較的少ないことに加えて、Am-241の半減期がガラス溶解時間と比しても短い物であることに拠っているものと考えられる。

U-233については、いずれのケースにおいても安定相は形成され、準安定相は形成されていない。これは、準安定相の溶解度が他と比べて極めて高いことに拠るものである。また、ケースA-1, 及びA-2において安定相のプロファイルに二つの段階が見られるのは、ガラスからU-233として放出されたものの沈澱と、同じ化学形態であるNp-237の安定相から崩壊によって生じたものとしてそれぞれ解釈される。従って、緩衝材外側領域では、U-233濃度が安定相について不飽和であるにも係わらずNp-237の沈澱が存在するためにUの沈澱が形成されている。



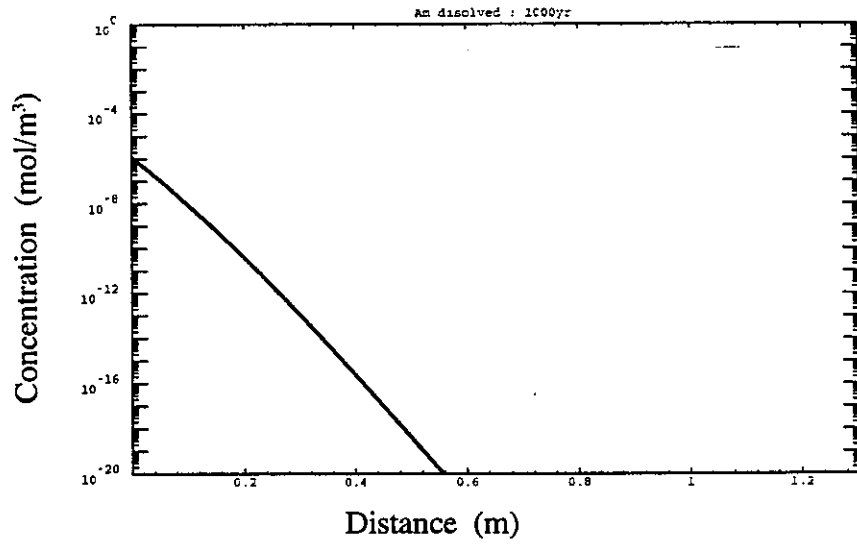
以上の各ケースについて、人工バリアからの核種放出率の経時変化をまとめた結果を図3.1.3-2 に示す。上述した濃度プロファイルの傾向を反映して、Np-237 については、ケースA-1 とケースA-4 との間には、最大放出率において約5桁の差が存在している。ケースA-1 の最大放出率が、平成3年度成果報告書における酸化物系溶解度制限固相における結果とほぼ同じであることから、本研究で考えた反応速度の幅において溶解度制限固相モデルを5桁上回る放出率が生じ得るものと考えられる。また、ケースA-1 とケースA-2 との差異も1桁強あることから、準安定相形成のタイムスケール（閉鎖系で過飽和状態が減衰する際の半減期に相当する）が約1カ月、安定相のそれが約1年を下回るようになると溶解度限界モデルの非保守性が顕在化するということになる。この結果は、通常数週間で行われる実験において生成が確認できる固相を用いる分には溶解度限界モデルを適用することが妥当であるが、ナチュラルアナログ等極めて長いスケールにおいて自然界で形成された固相をその生成速度を無視して溶解度制限固相として仮定することには大きな危険性が含まれることを示している。U-233 については、同様の傾向が認められるものの核種放出率の変動幅は1桁程度と小さい。なお、Am-241 についてはいずれの場合も有意な量の放出は認められなかった。

また、同様の解析を核分裂生成物であるTc-99 について行った結果（人工バリアからの核種放出率）を図3.1.3-3 に示す。ここでは、最も反応速度の大きいケースC-1 と最も小さいケースC-4 との最大放出率の差は、11桁以上に達している。これは、Tc-99 のインベントリが比較的多く、かつ、溶解度は極めて小さいために、そもそもガラス浸出率律速のフラックスと溶解度限界のフラックスとの差が大きく、反応速度が変化することによって核種放出率がこれら二つの極値の間を推移するためである。また、ケースC-1 における核種放出率も、平成3年度報告書における酸化物系溶解度制限固相の解析結果よりも約1桁大きく、安定相生成のタイムスケールが約1月であってもこれが実効的な溶解度制限固相とは成らない可能性があることを示唆している。

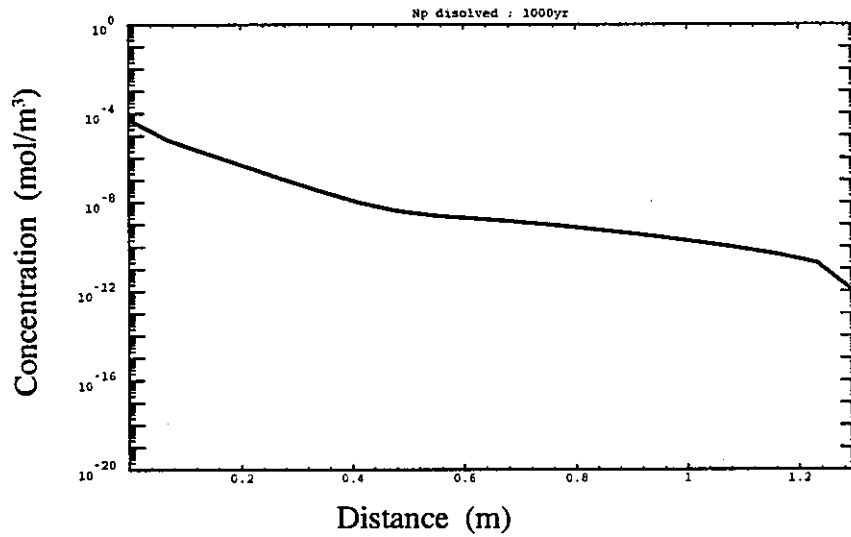
## (2) その他のパラメータの影響

Np-237, U-233, 及びTc-99 についてガラス表面積（従ってガラスからの核種溶出率）、及び分配係数を変化させた諸ケースについての核種放出率の計算結果をそれぞれ図3.1.3-4、3.1.3-5、及び3.1.3-6にまとめる。いずれのパラメータの変動もピーク到達時間は変動させ得るものの、最大核種放出率を顕著に変化させるものではない。

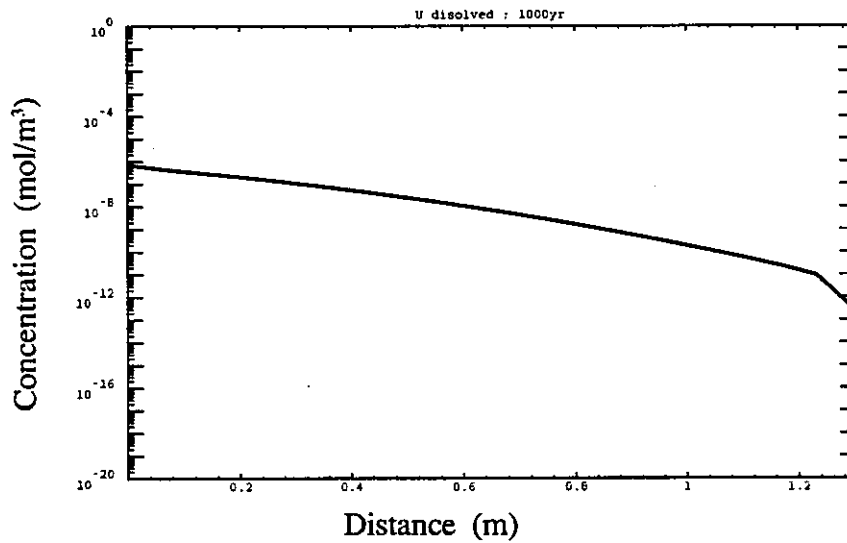
以上、基本ケースにおける感度解析の各ケースにおける最大核種放出率と、その時刻とを図3.1.3-7 (Np-237), 図3.1.3-8 (U-233), 及び図3.1.3-9 (Tc-99)にまとめる。



Am-241

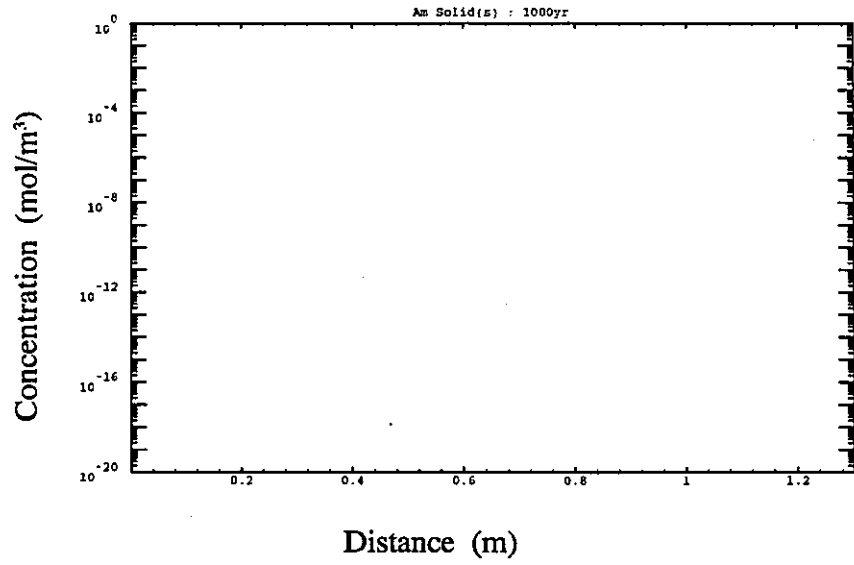


Np-237

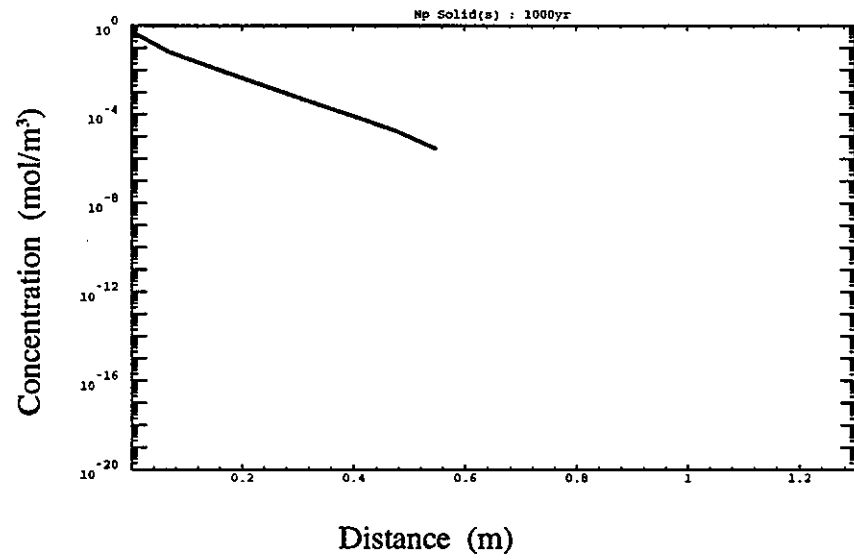


U-233

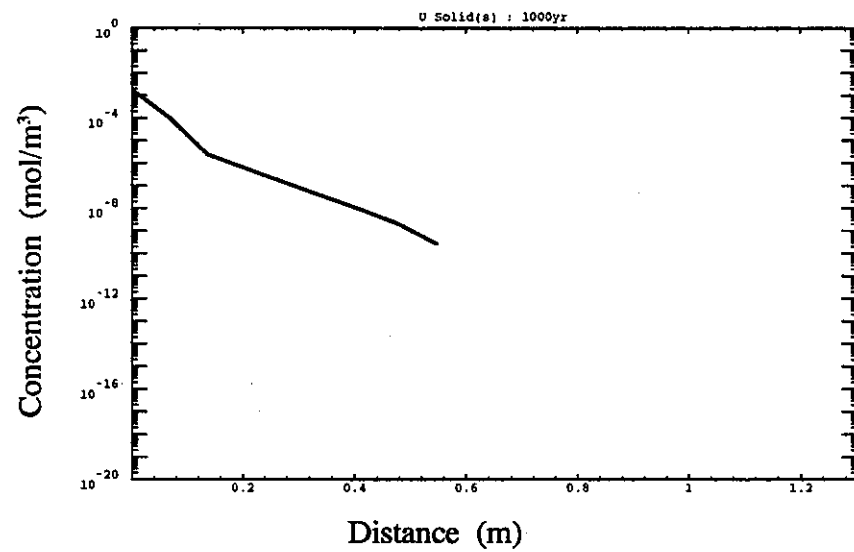
図 3.1.3-1 (1) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 溶存形, 1000 年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (2) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 安定相, 1000 年後)

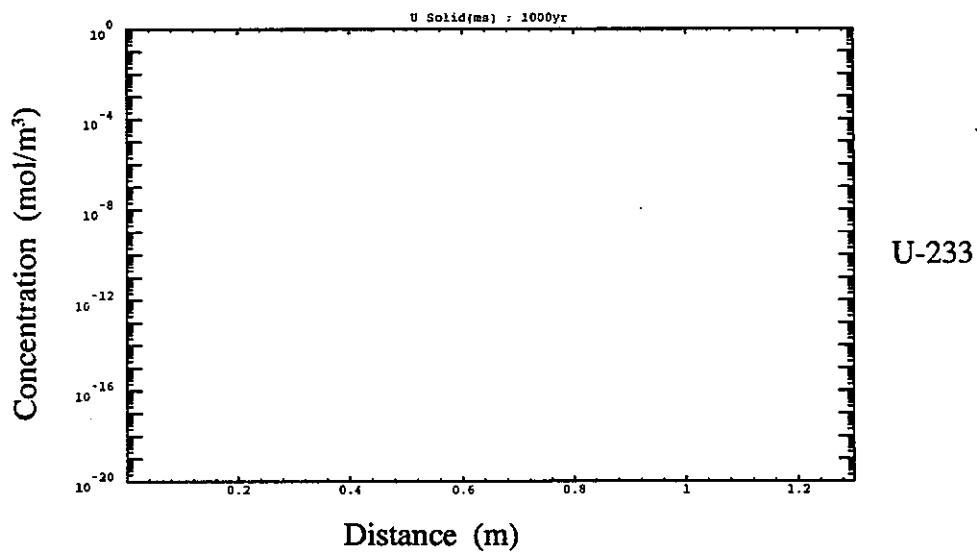
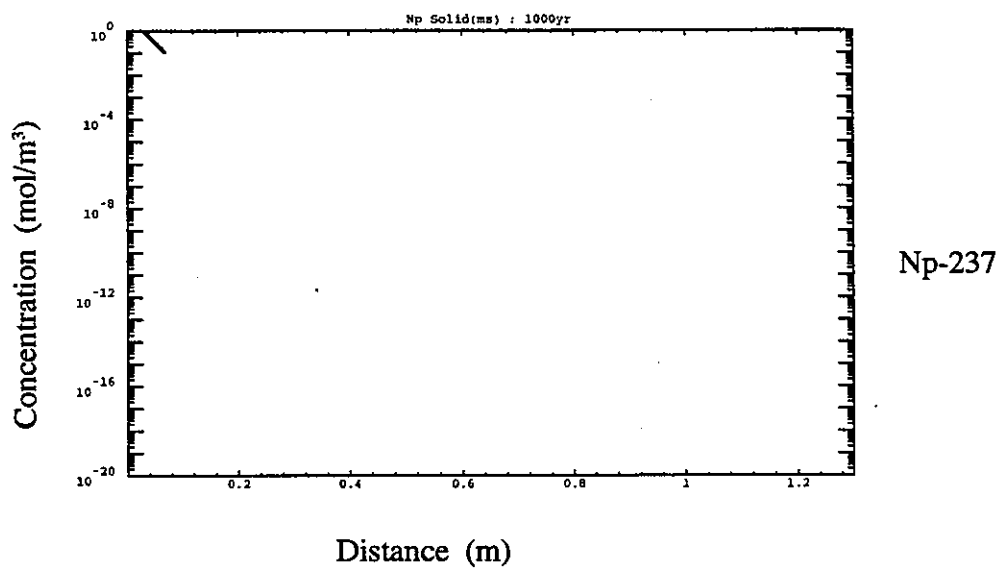
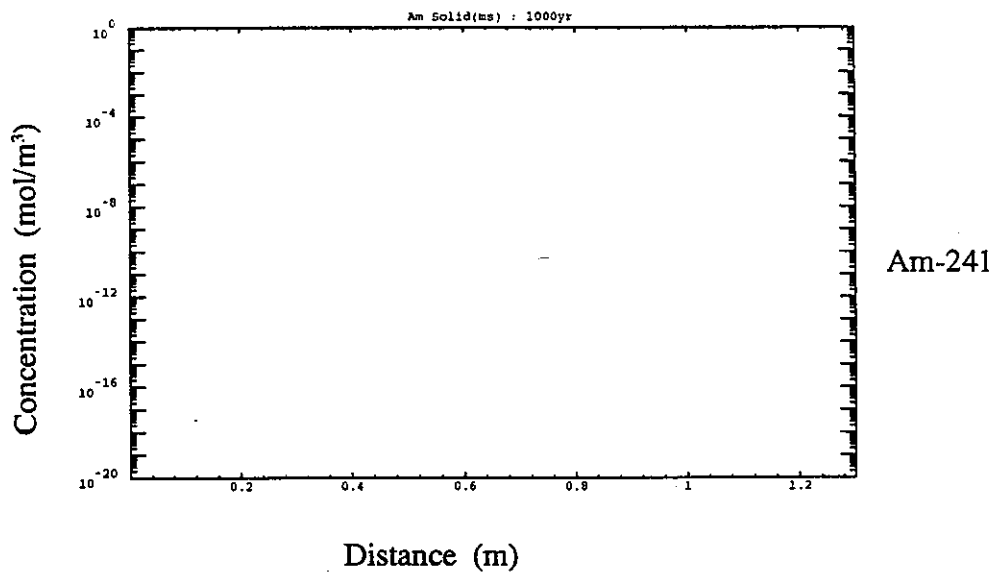


図 3.1.3-1 (3) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 準安定相, 1000 年後)

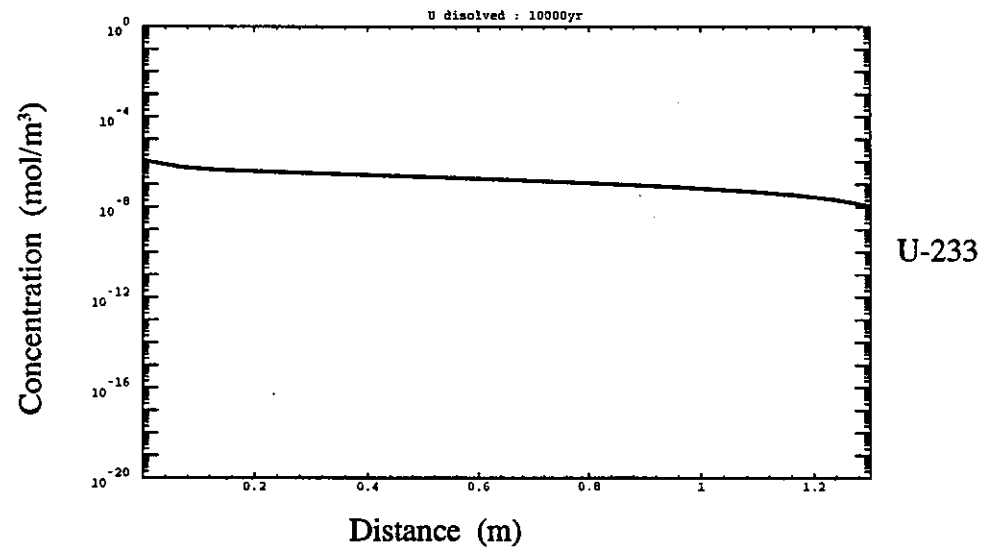
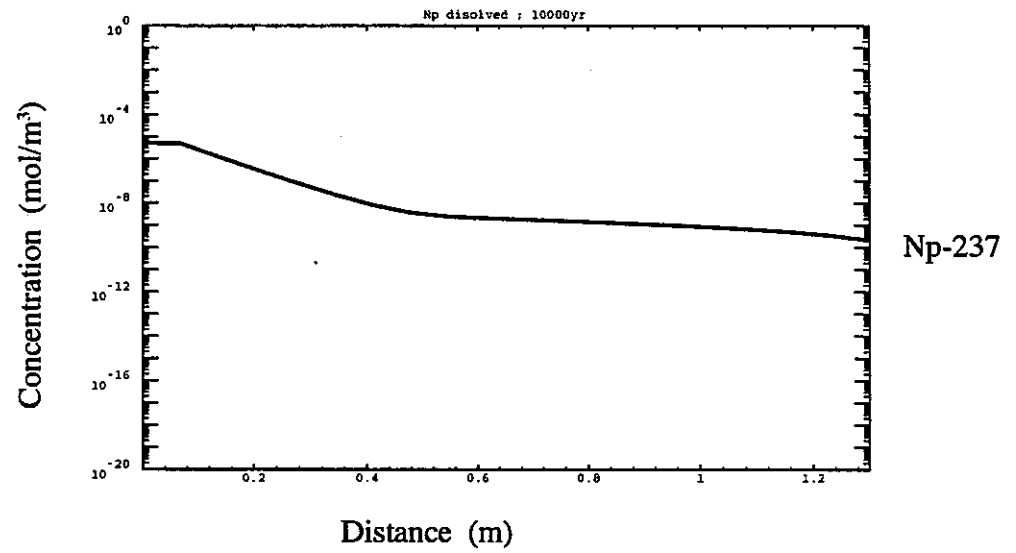
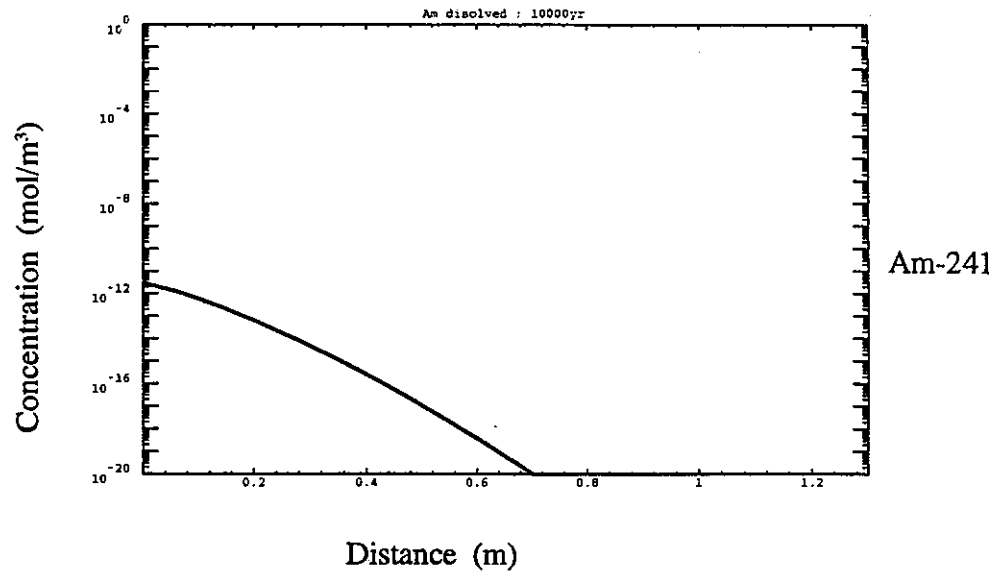


図 3.1.3-1 (4) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 溶存形, 10,000 年後)

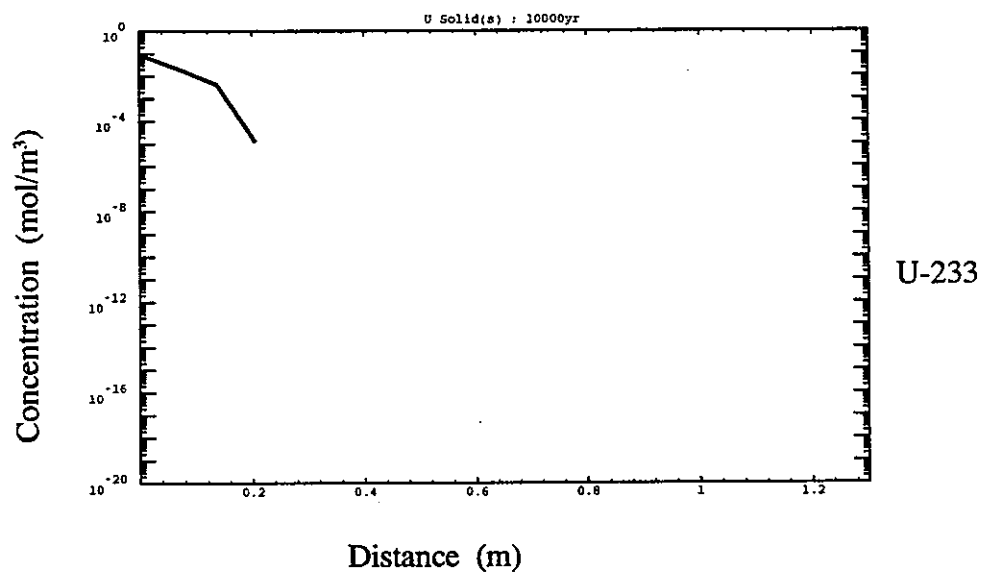
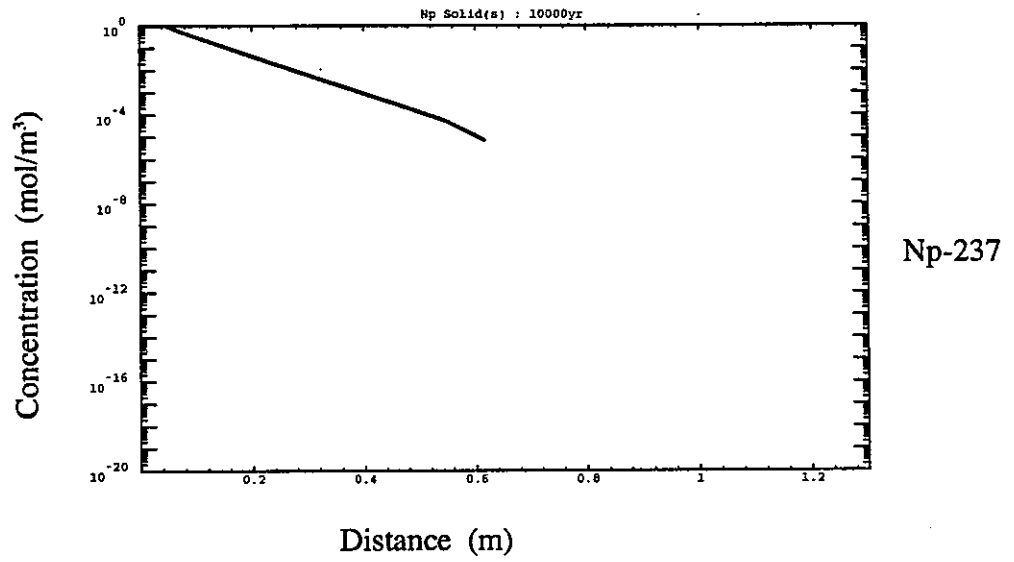
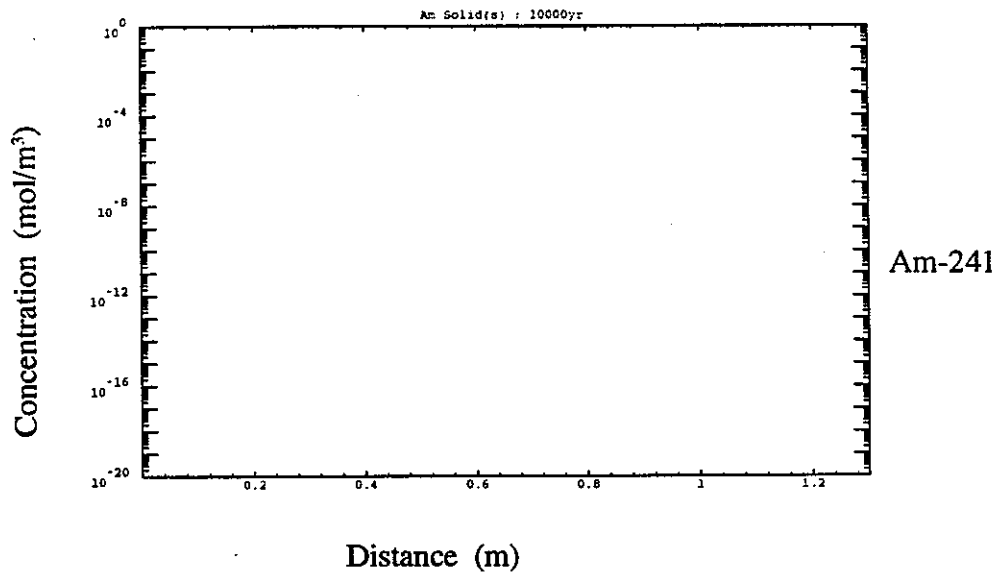


図 3.1.3-1 (5) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 安定相, 10,000 年後)

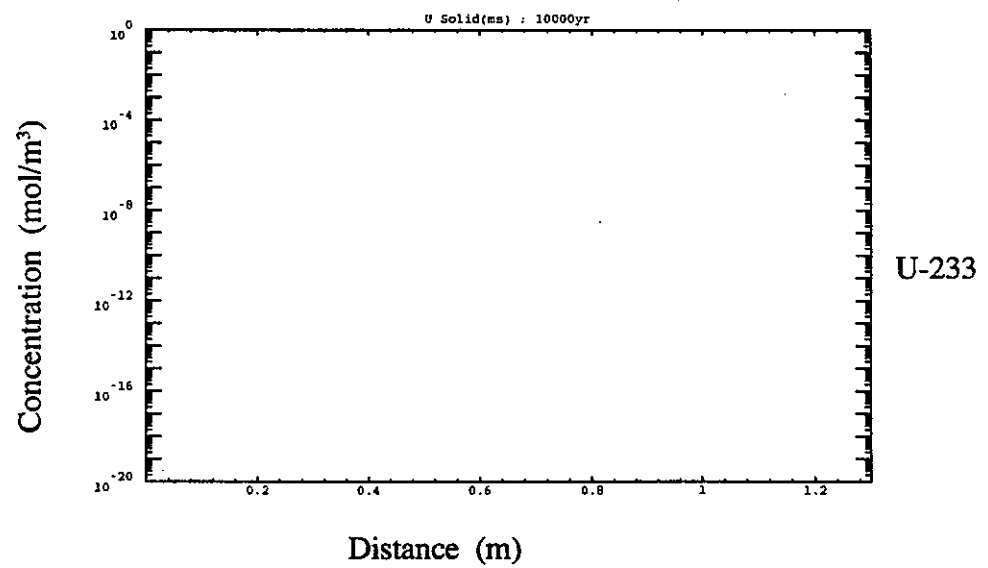
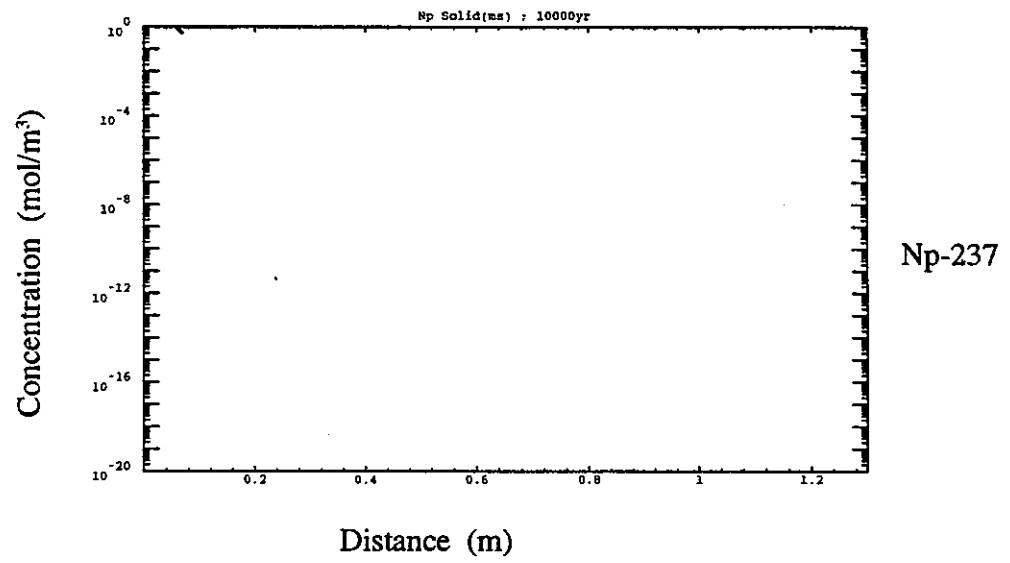
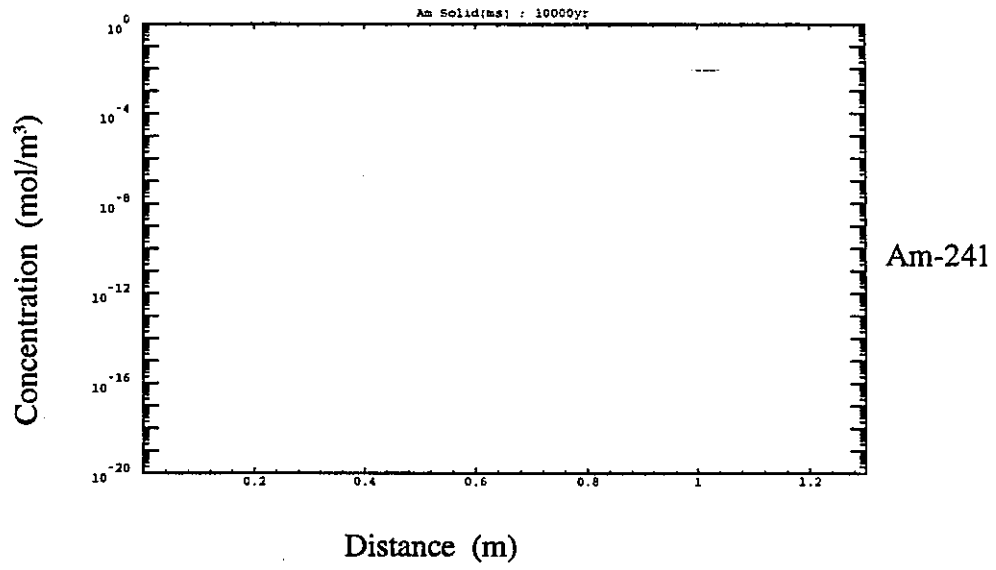


図 3.1.3-1 (6) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 準安定相, 10,000 年後)



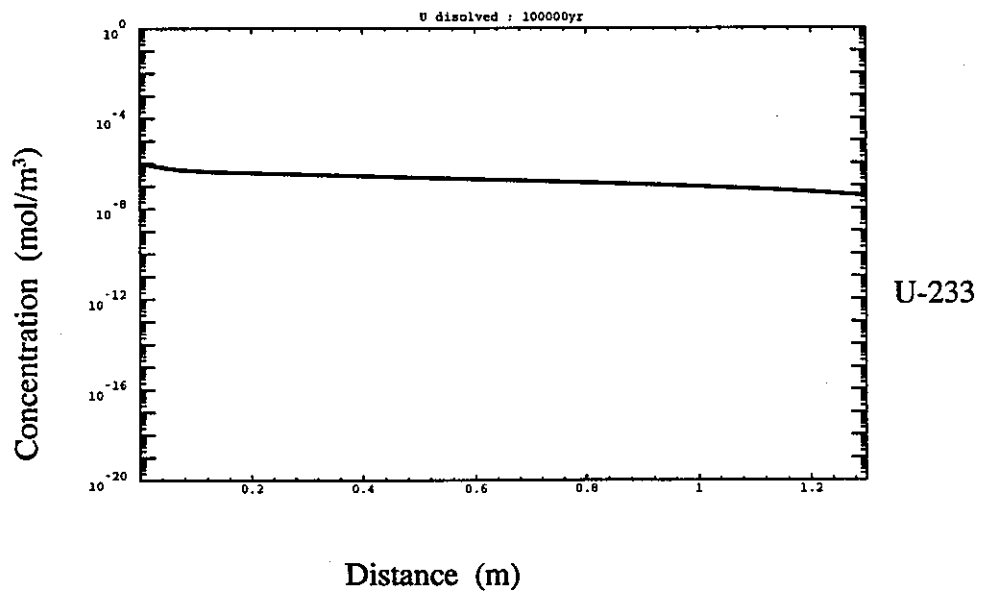
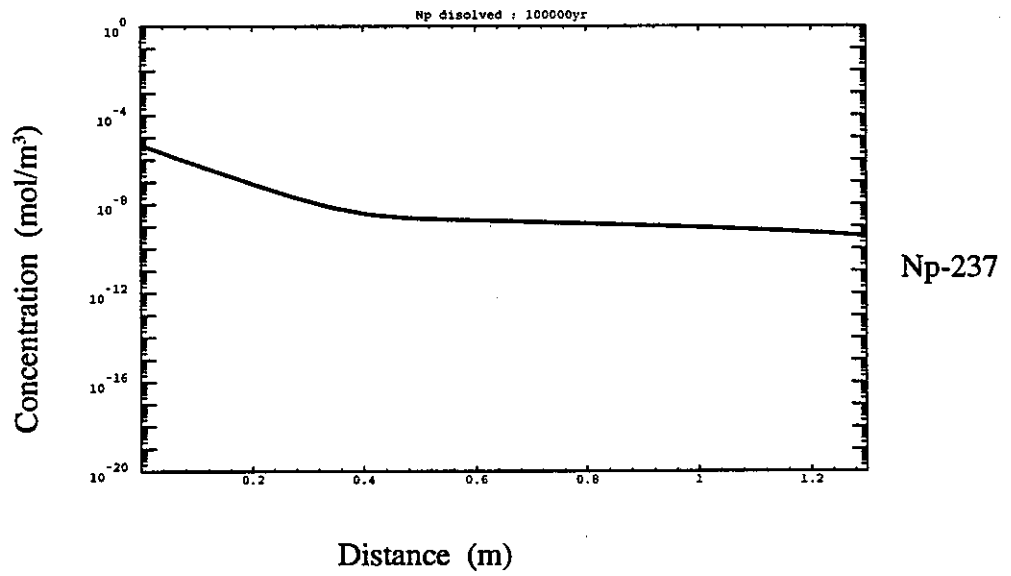
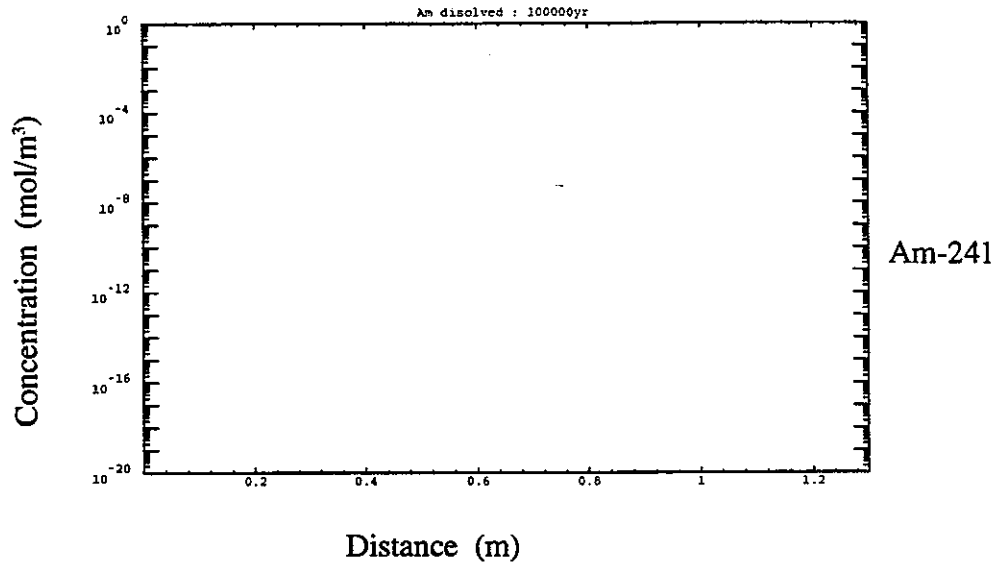


図 3.1.3-1 (7) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 溶存形, 10 万年後)

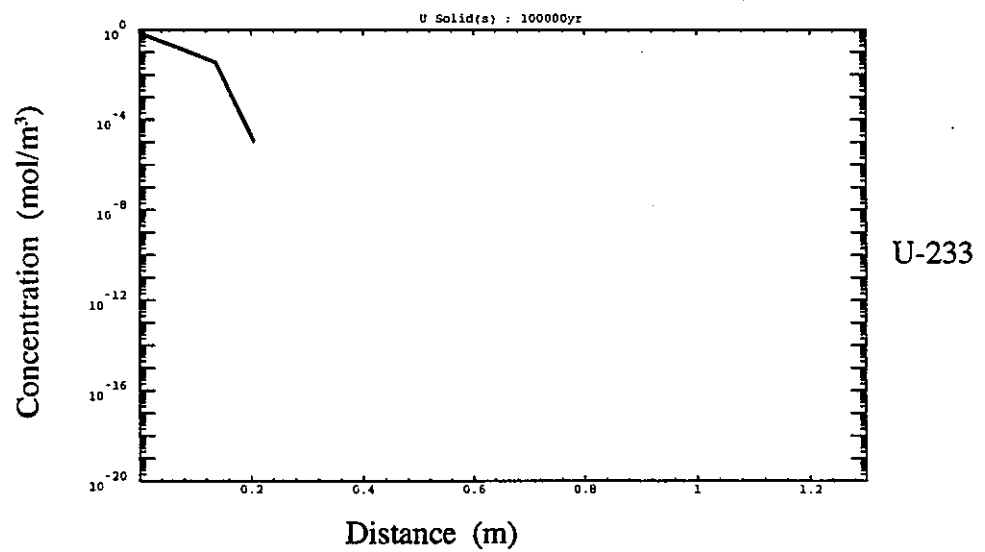
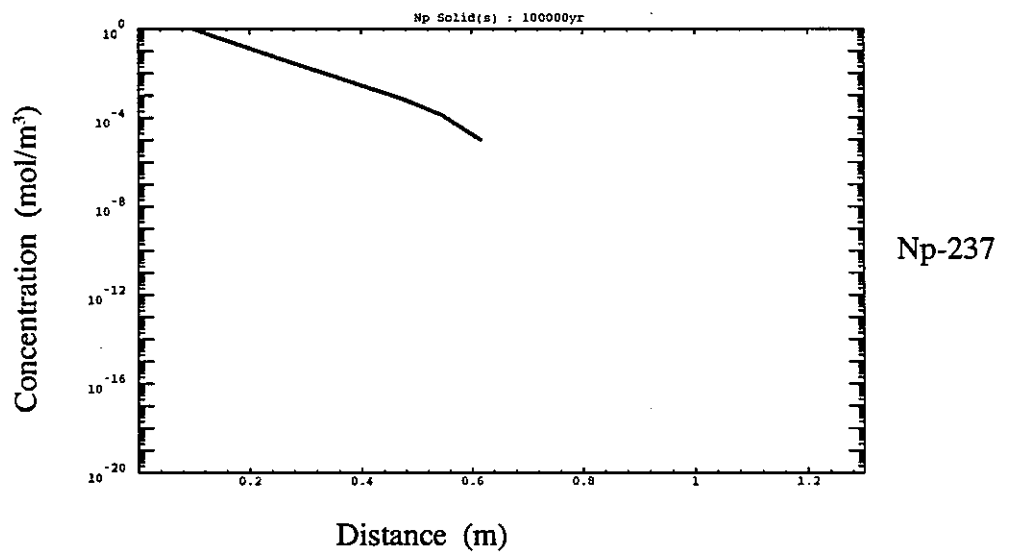
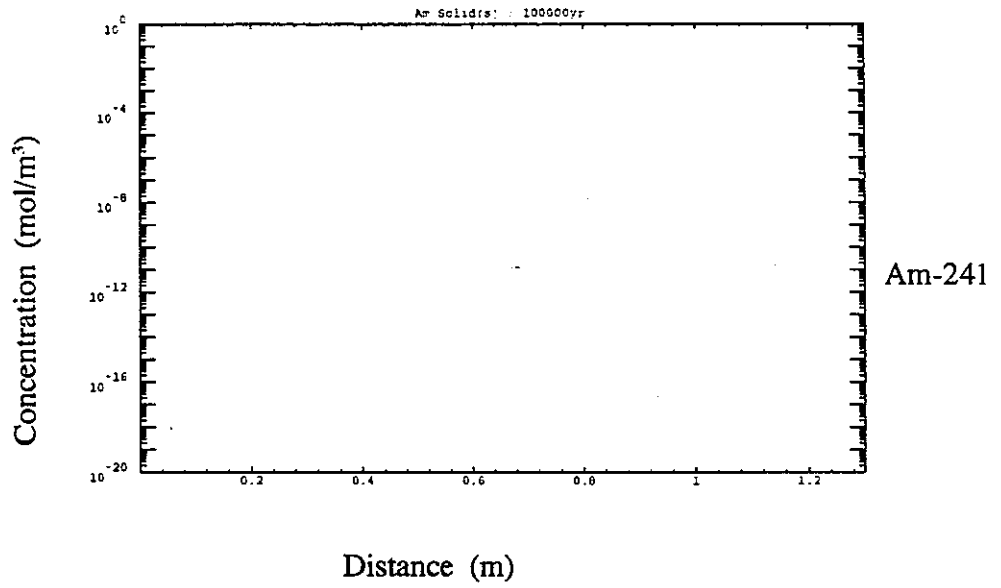


図 3.1.3-1 (8) 人工バリア中の核種濃度(ケース A-1, 安定相, 10 万年後)

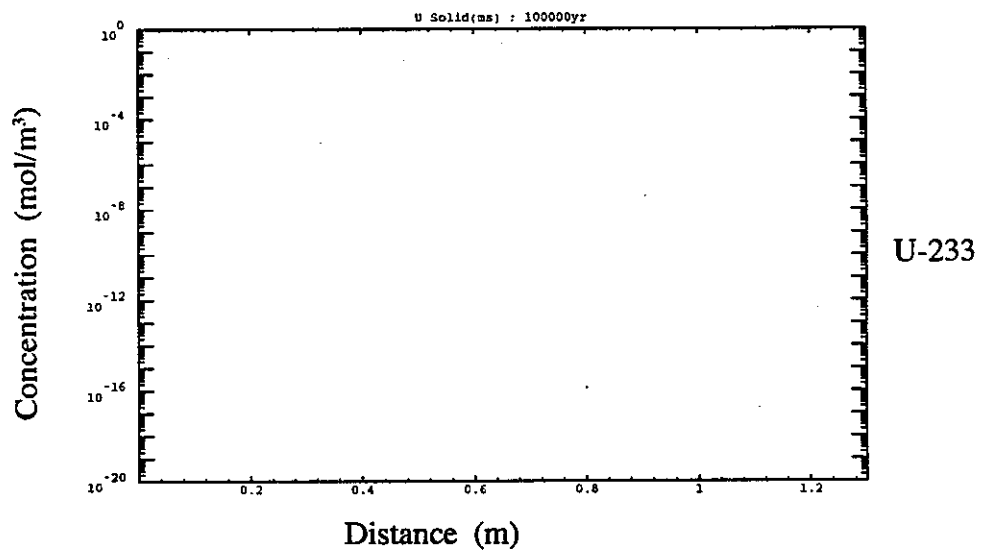
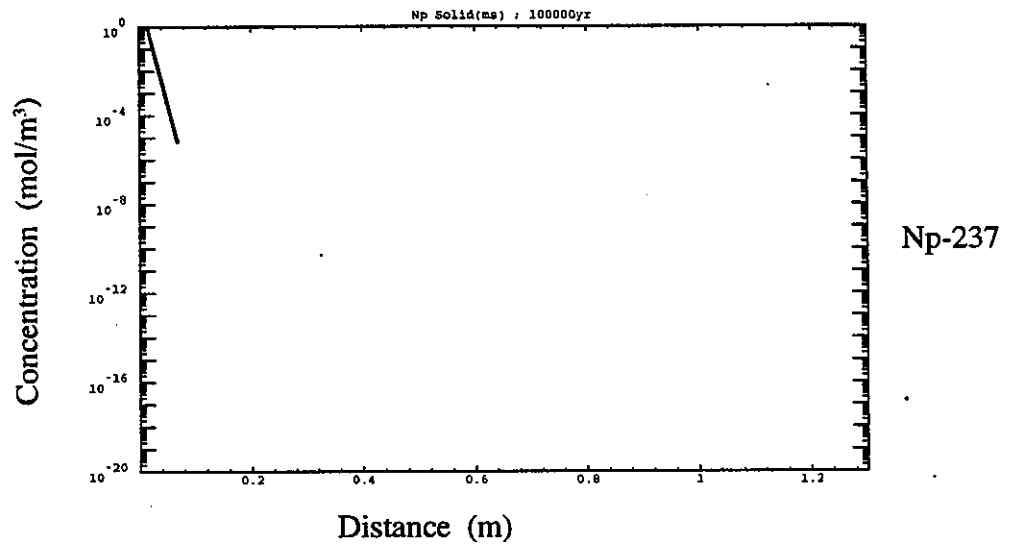
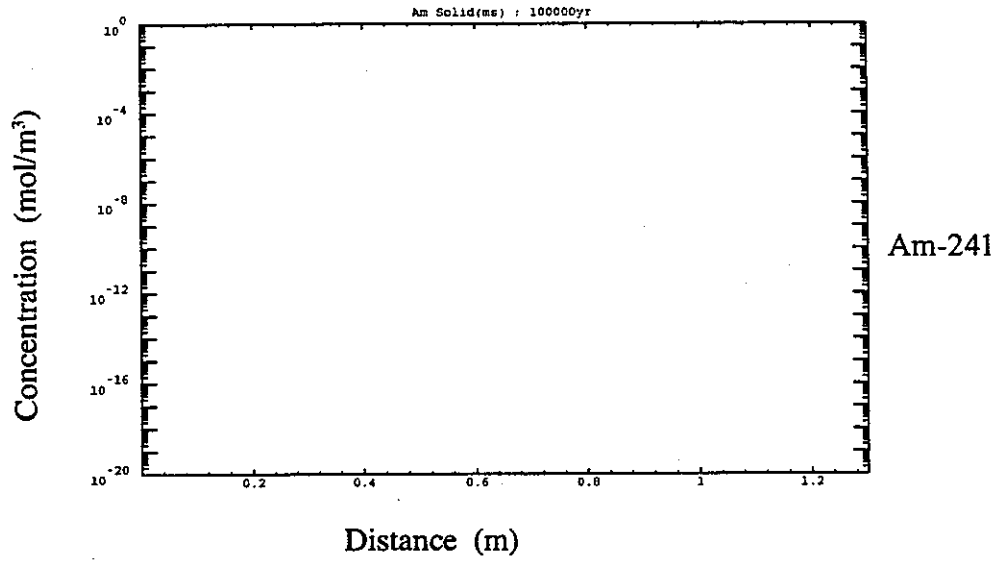


図 3.1.3-1 (9) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 準安定相, 10 万年後)

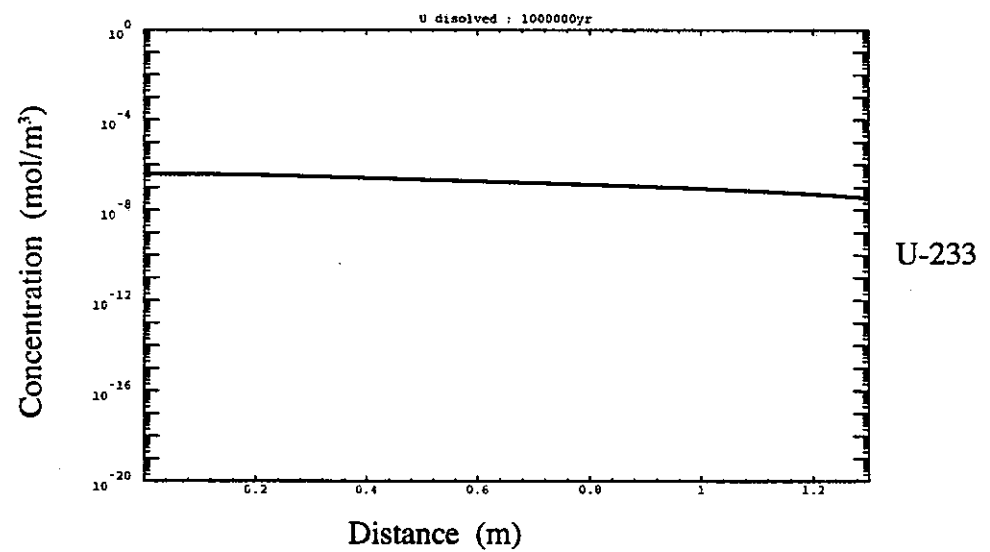
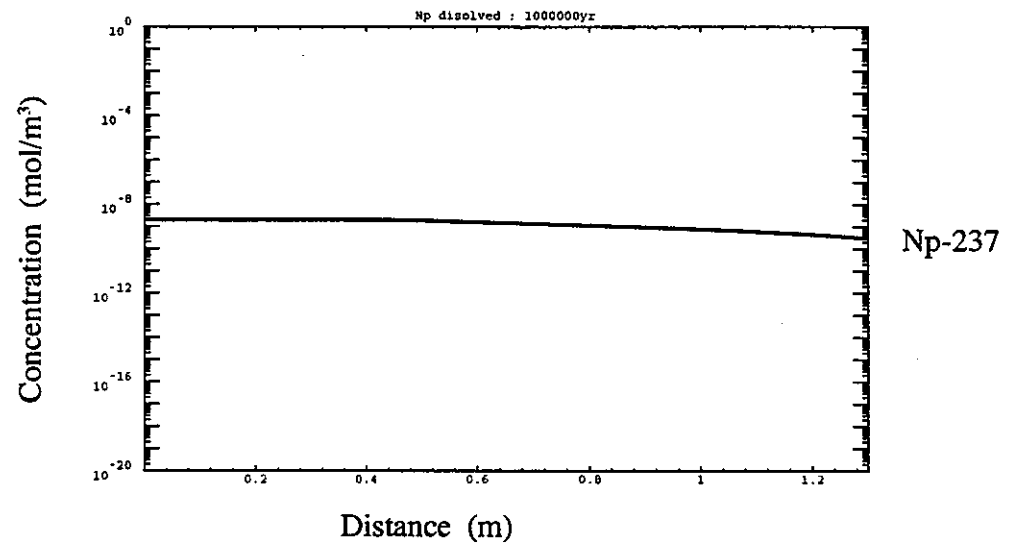
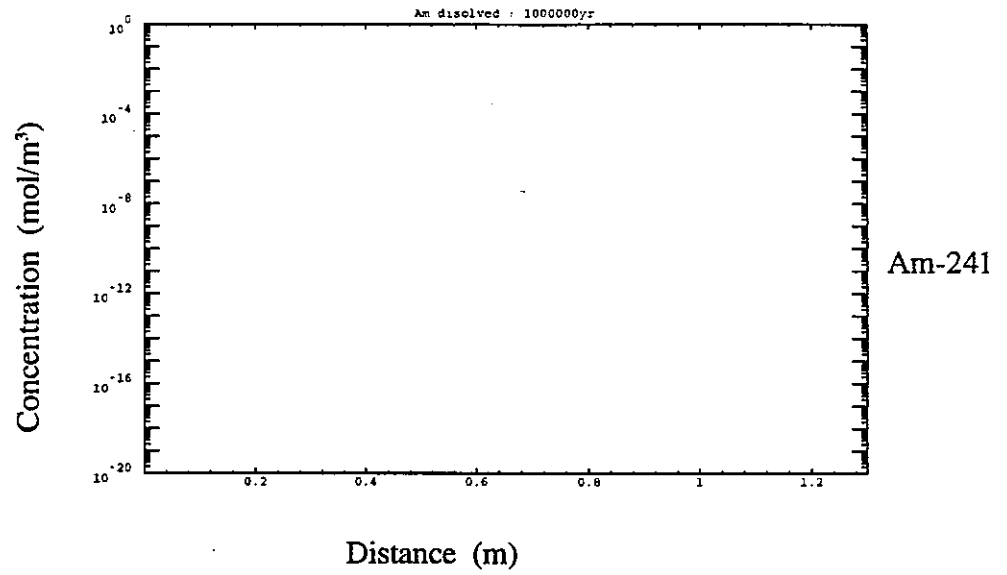


図 3.1.3-1 (10) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 溶存形, 100 万年後)

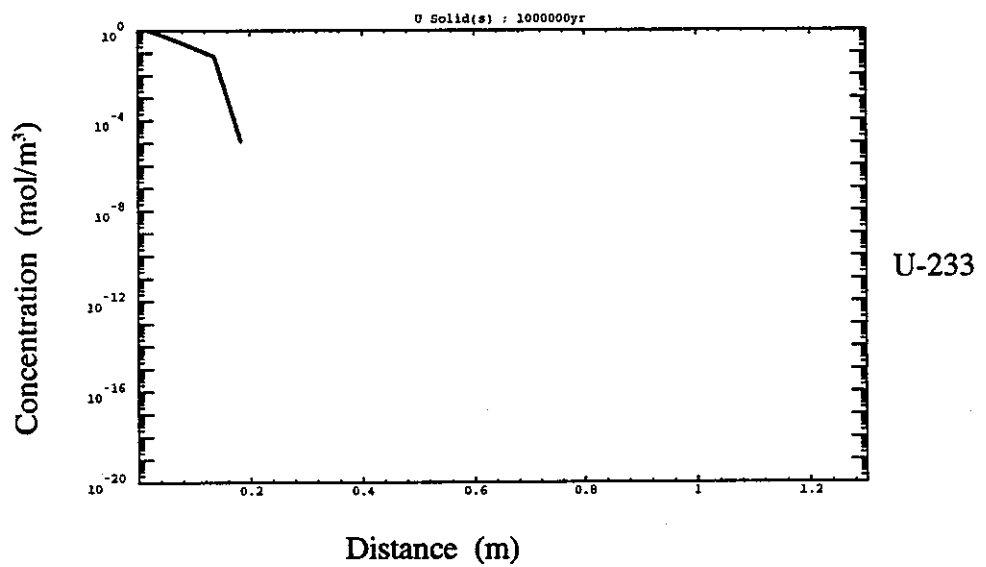
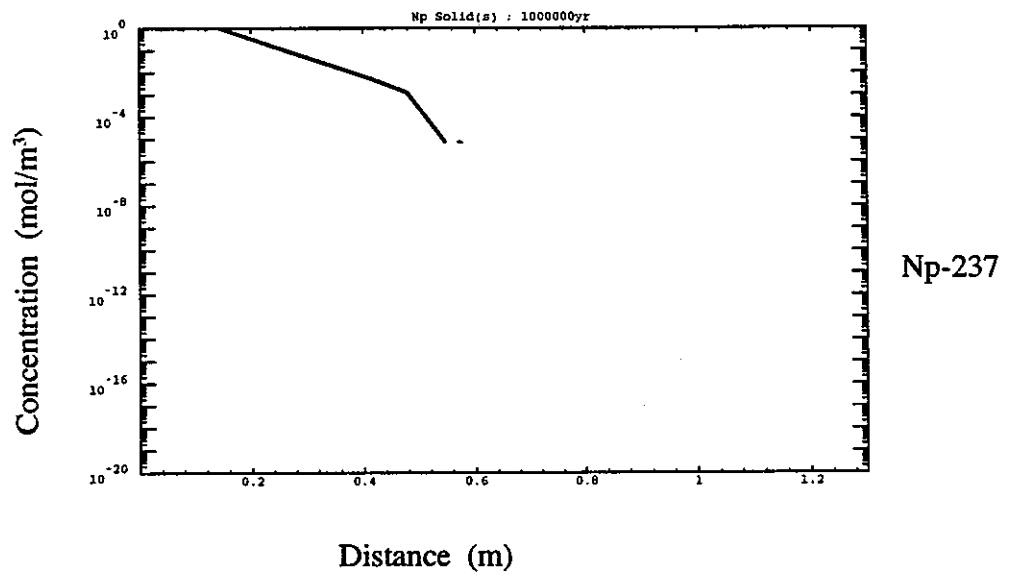
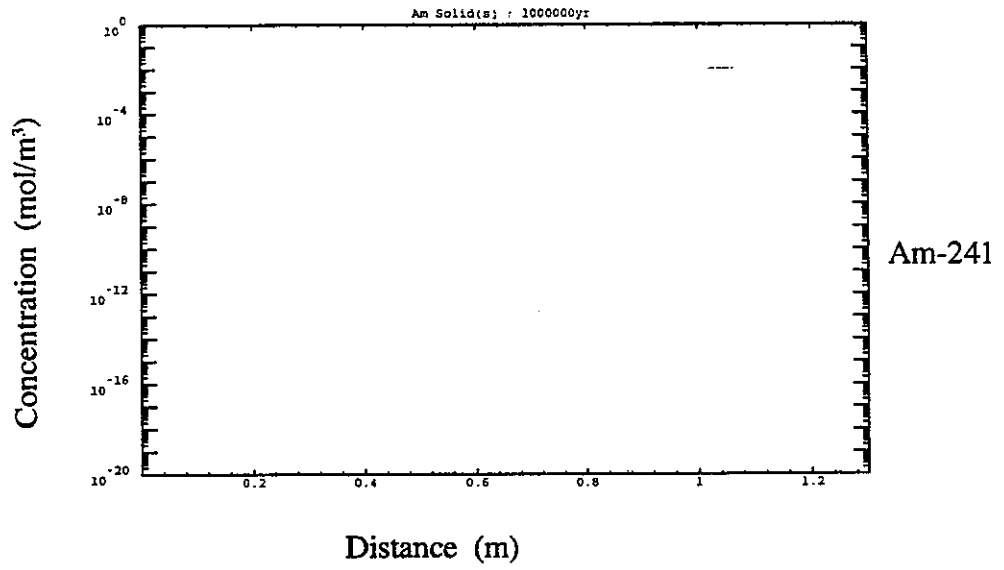


図 3.1.3-1 (11) 人工バリア中の核種濃度(ケース A-1, 安定相, 100 万年後)

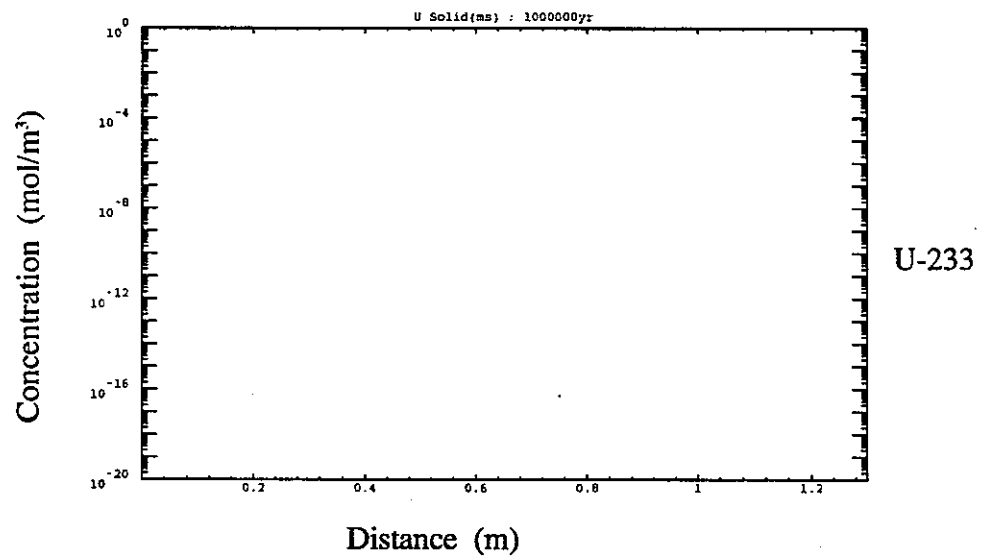
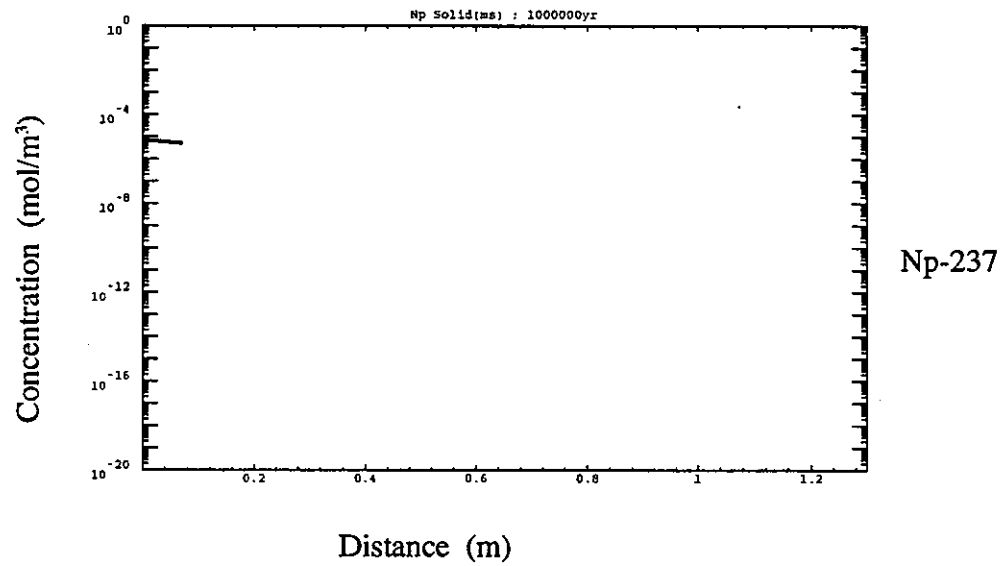
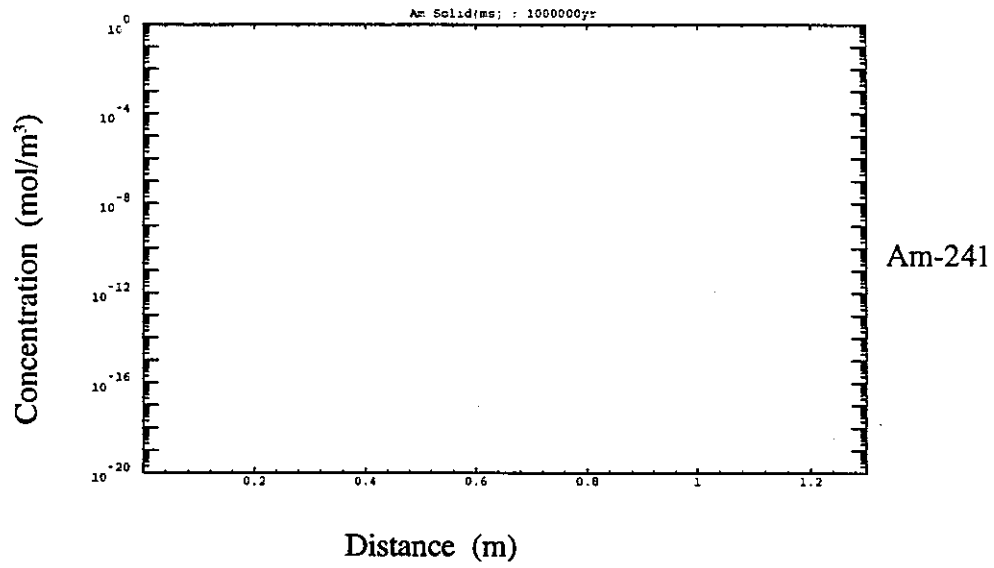
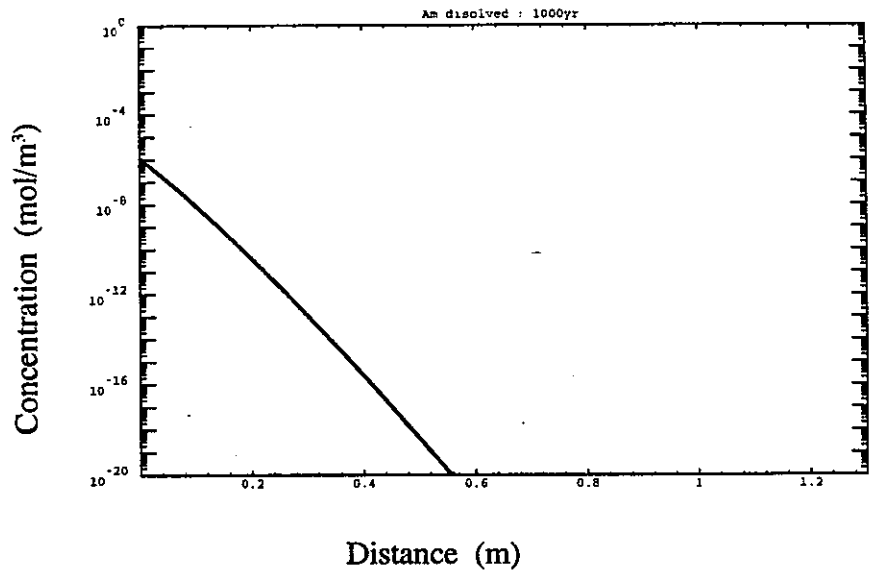
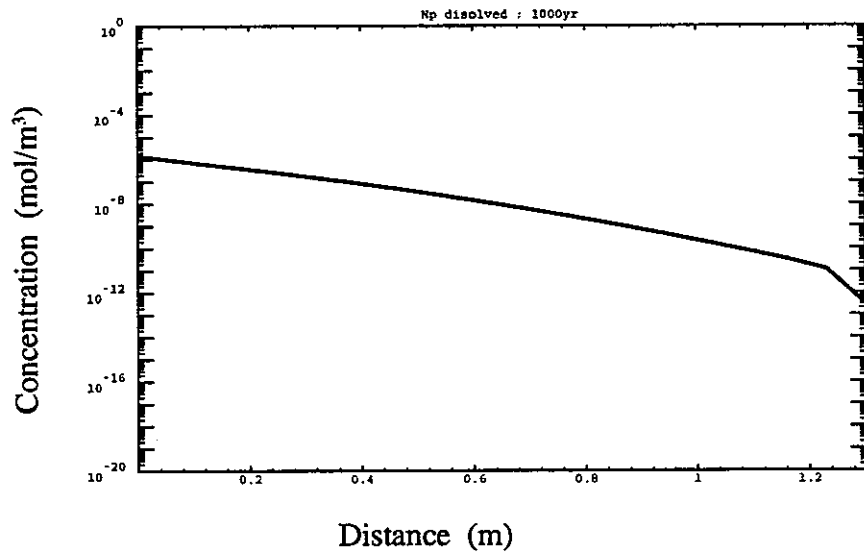


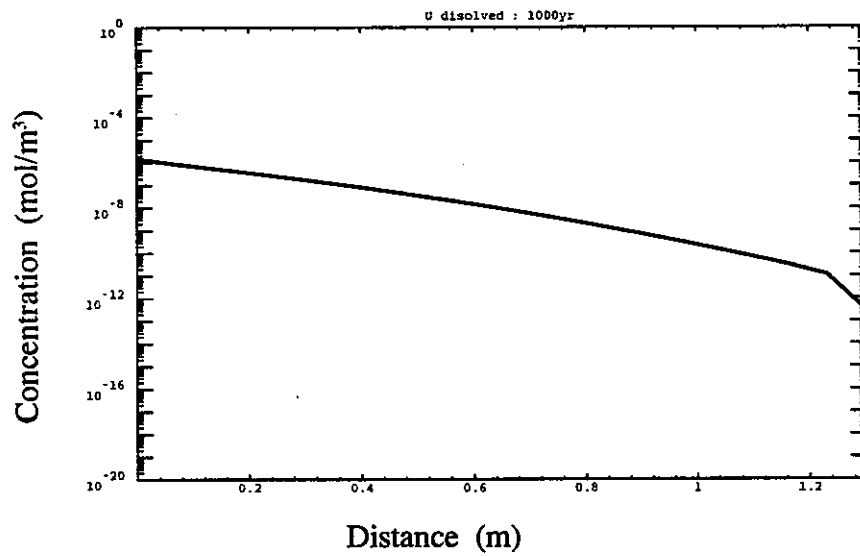
図 3.1.3-1 (12) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-1, 準安定相, 100 万年後)



Am-241

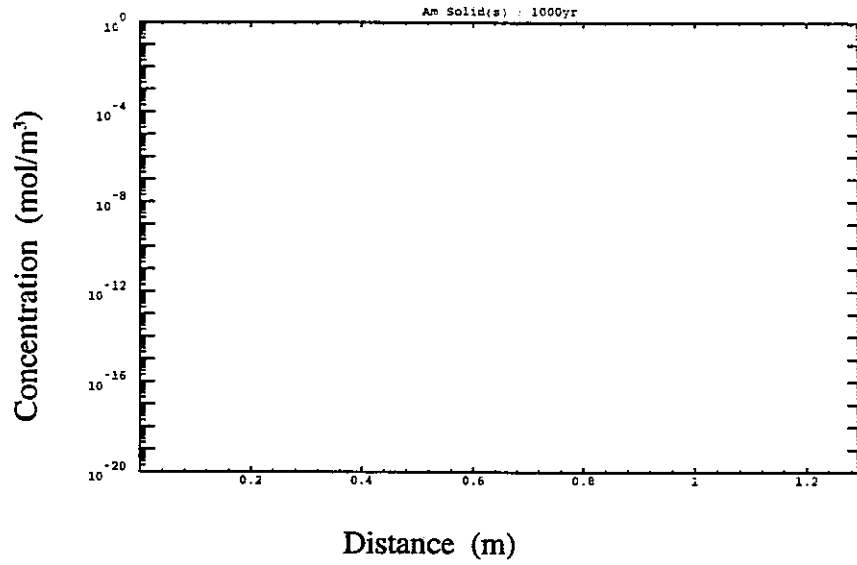


Np-237

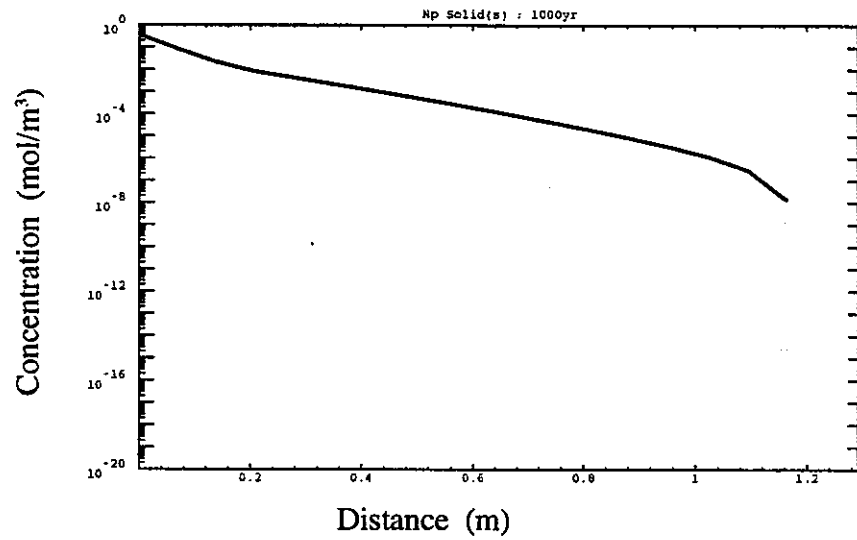


U-233

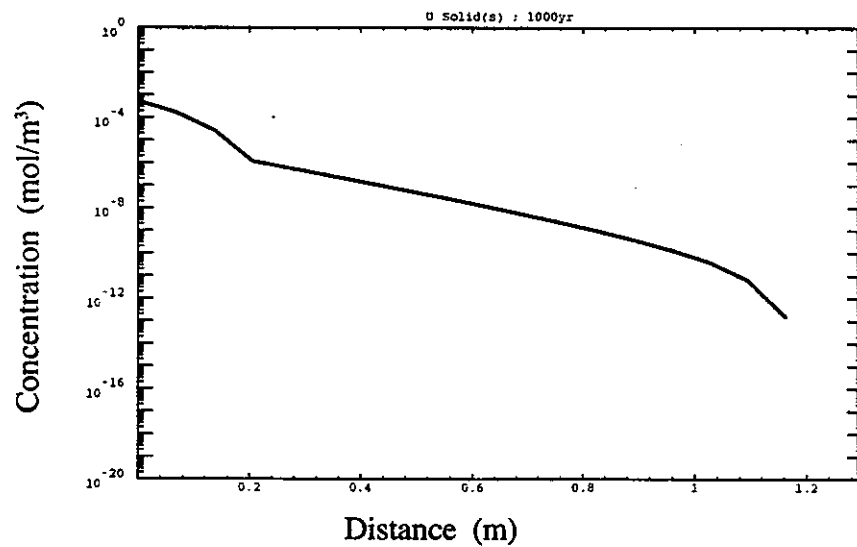
図 3.1.3-1 (13) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 溶存形, 1,000 年後)



Am-241



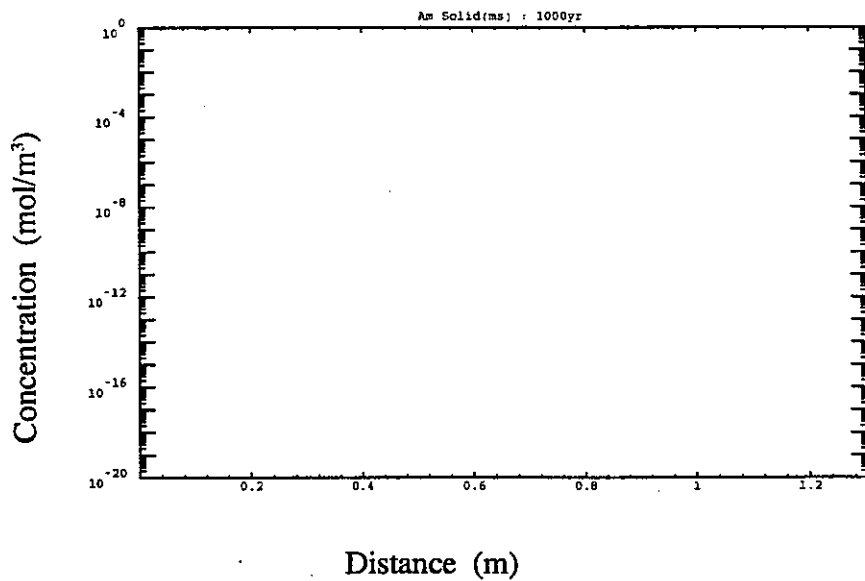
Np-237



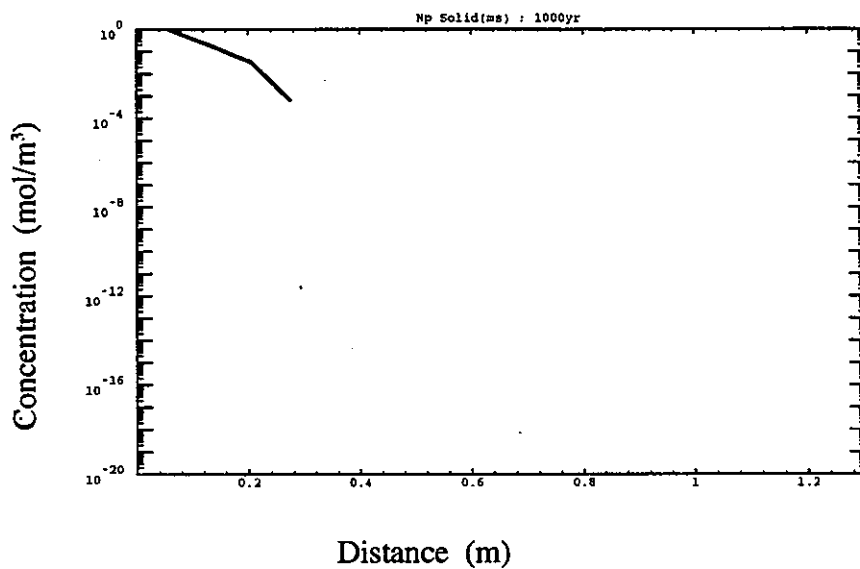
U-233

図 3.1.3-1 (14) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 安定相, 1,000 年後)

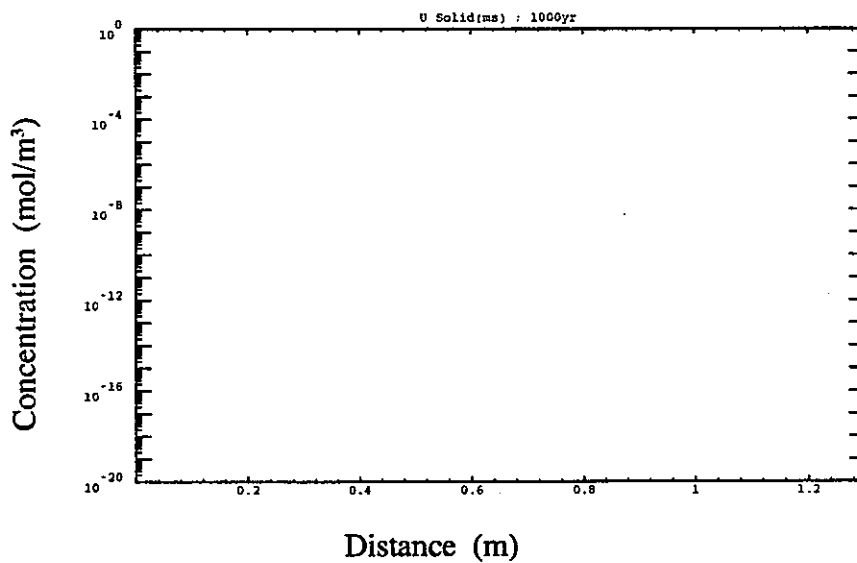




Am-241

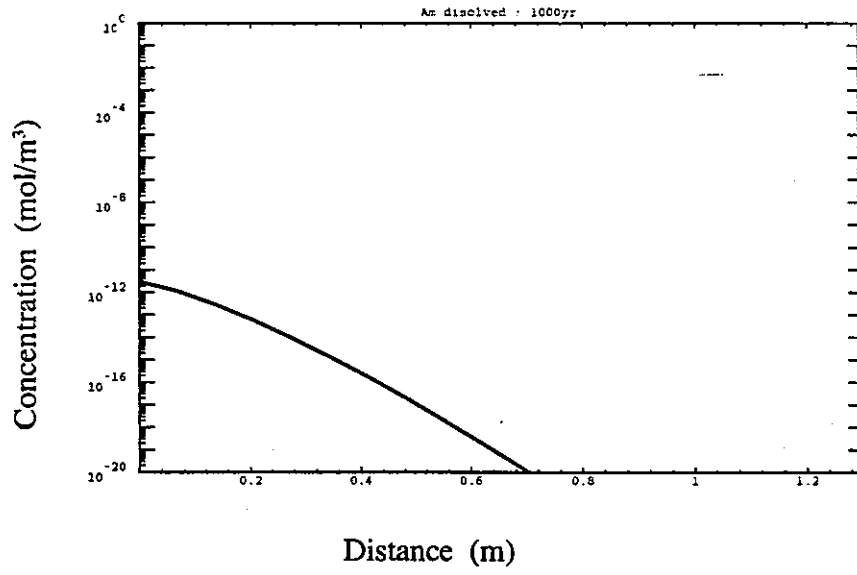


Np-237

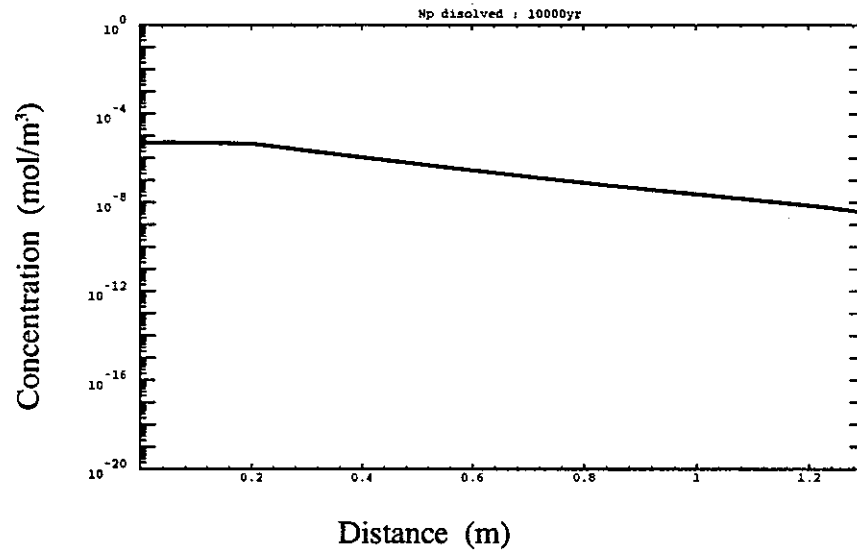


U-233

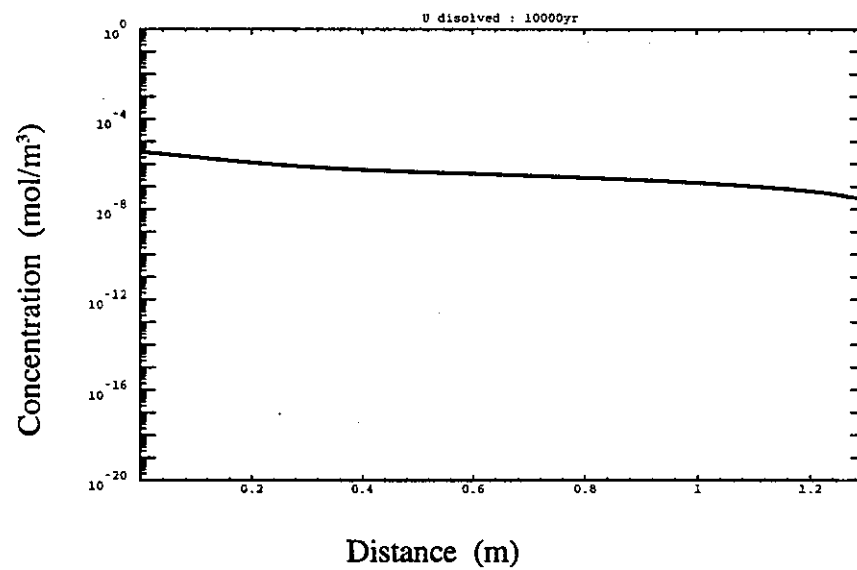
図 3.1.3-1 (15) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 準安定相, 1,000 年後)



Am-241

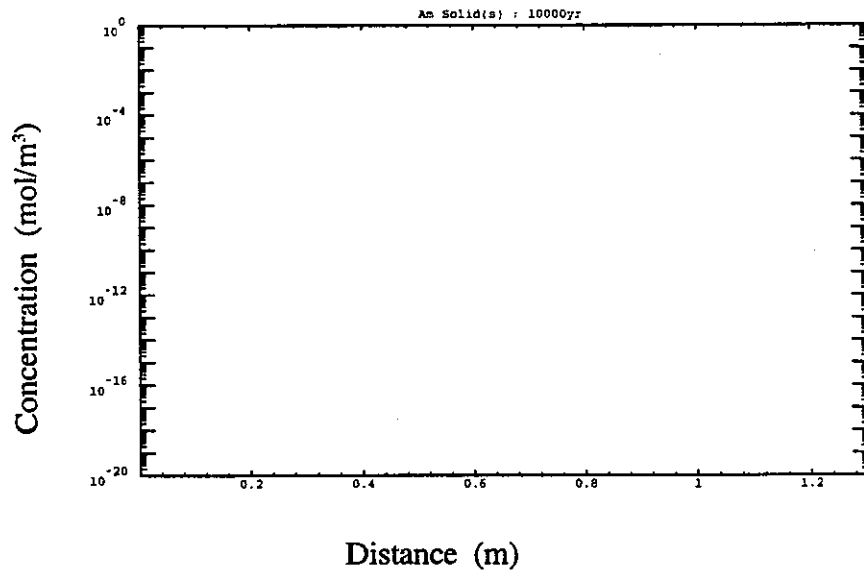


Np-237

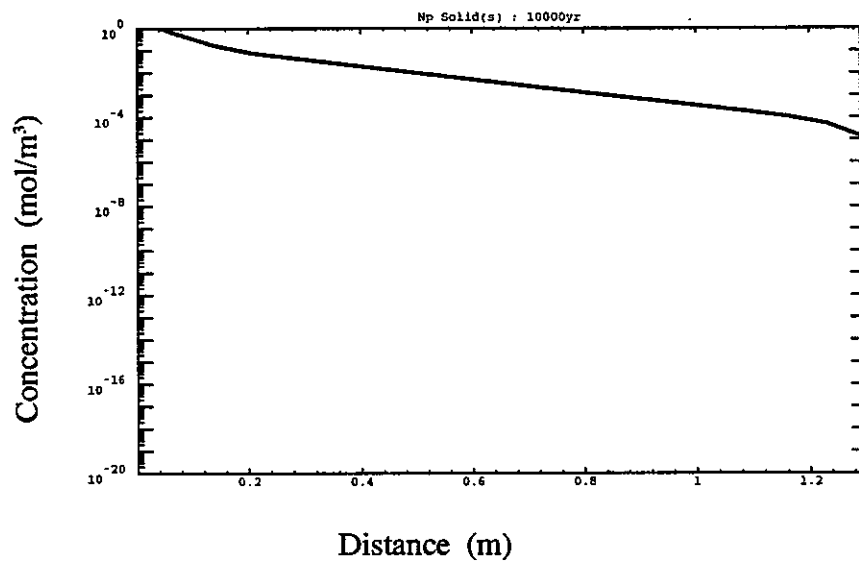


U-233

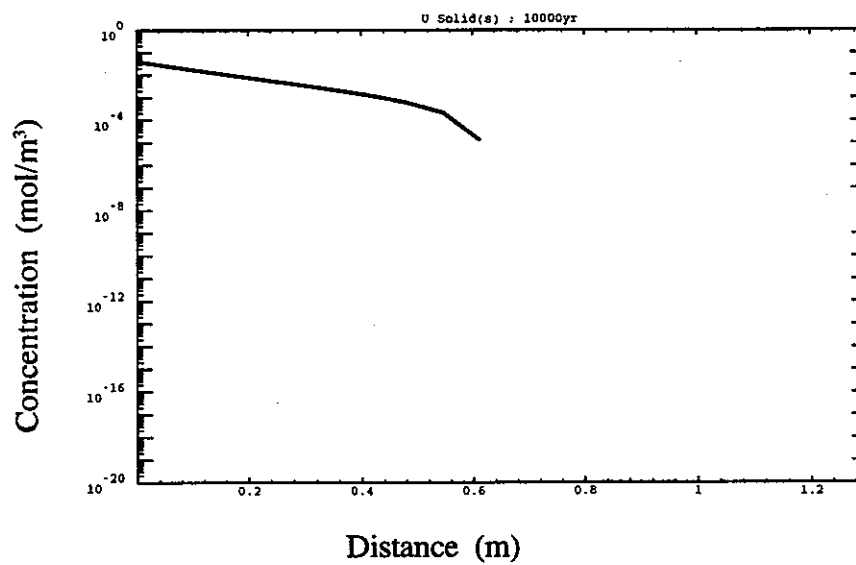
図 3.1.3-1 (16) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 溶存形, 10,000 年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (17) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 安定相, 10,000 年後)

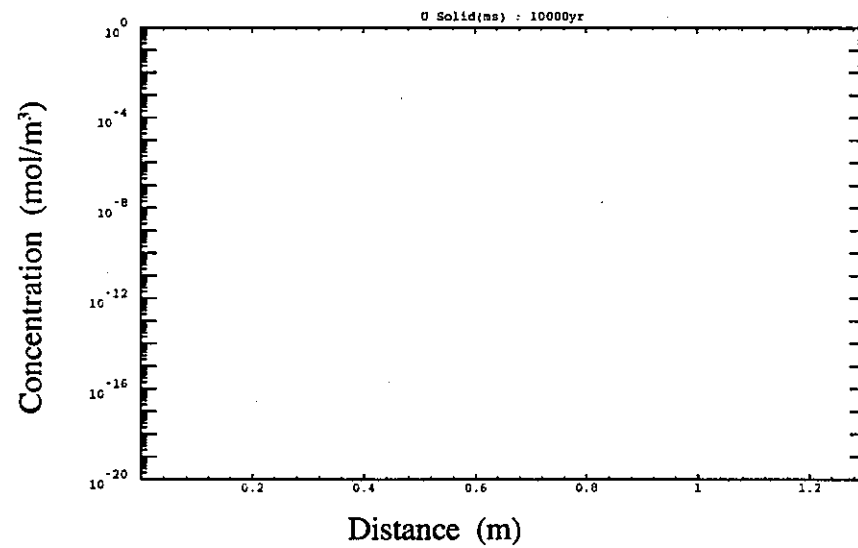
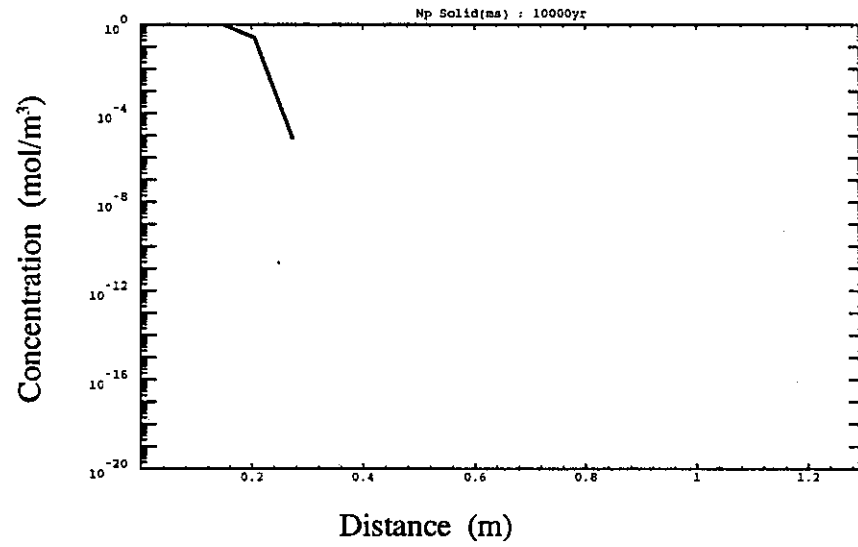
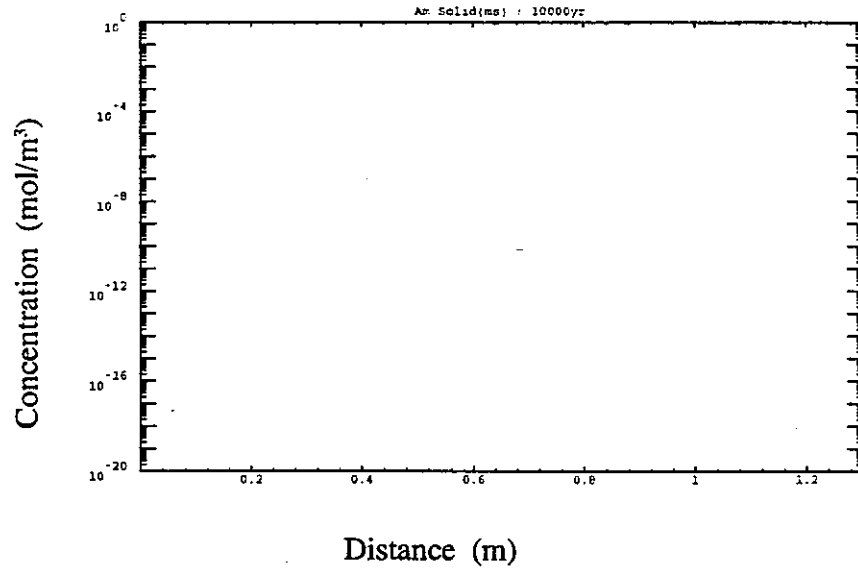
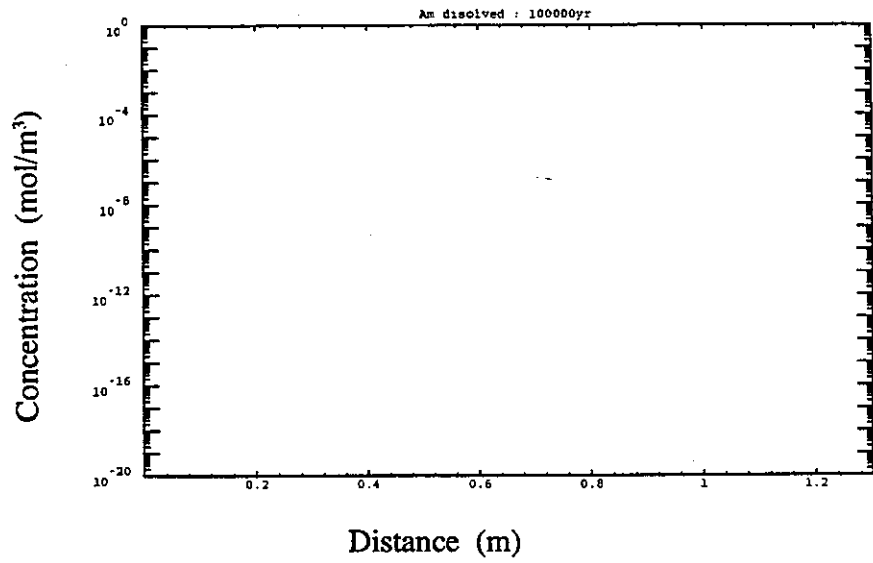
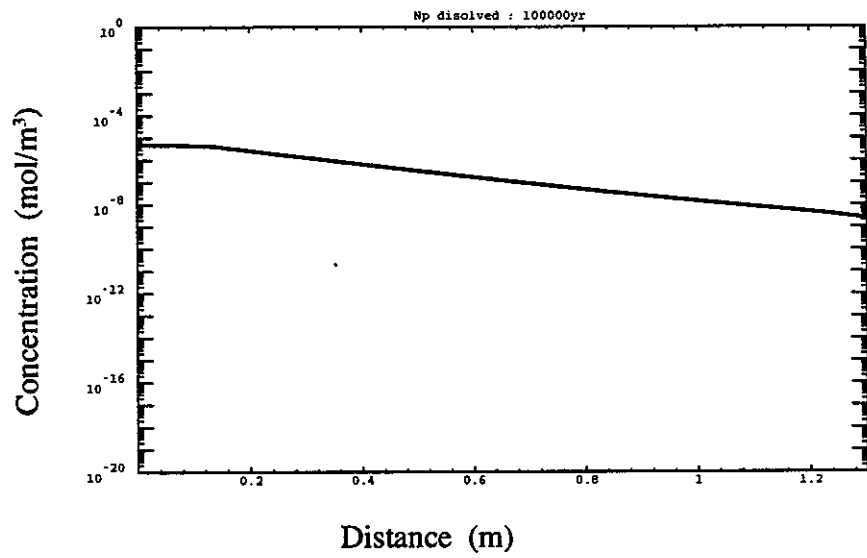


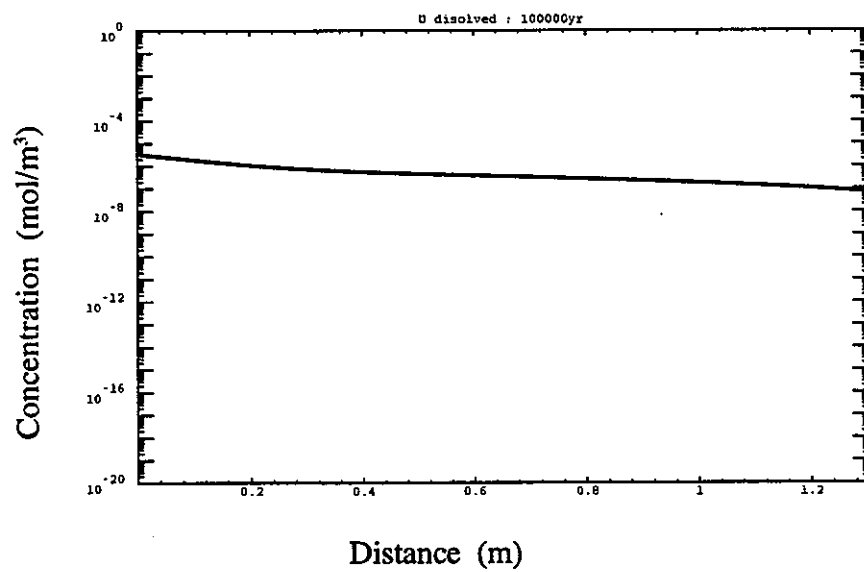
図 3.1.3-1 (18) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 準安定相, 10,000 年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (19) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 溶存形, 10 万年後)

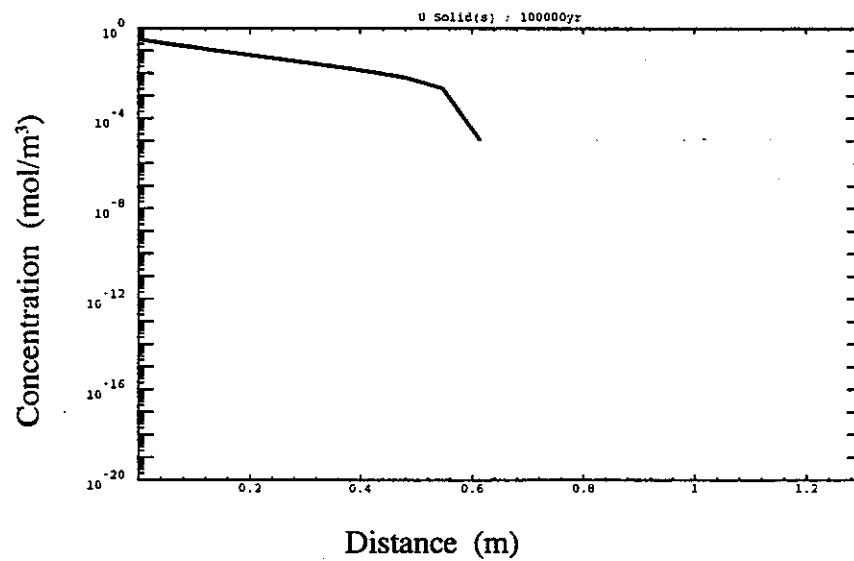
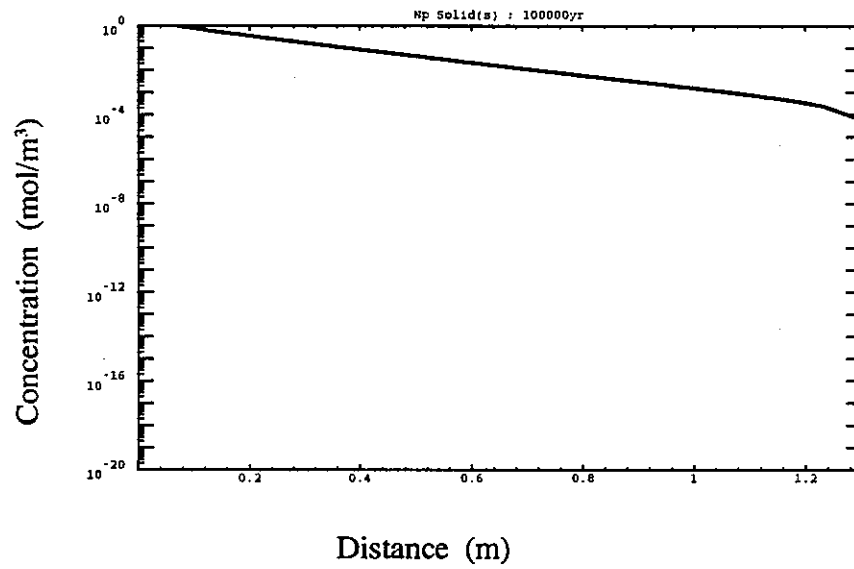
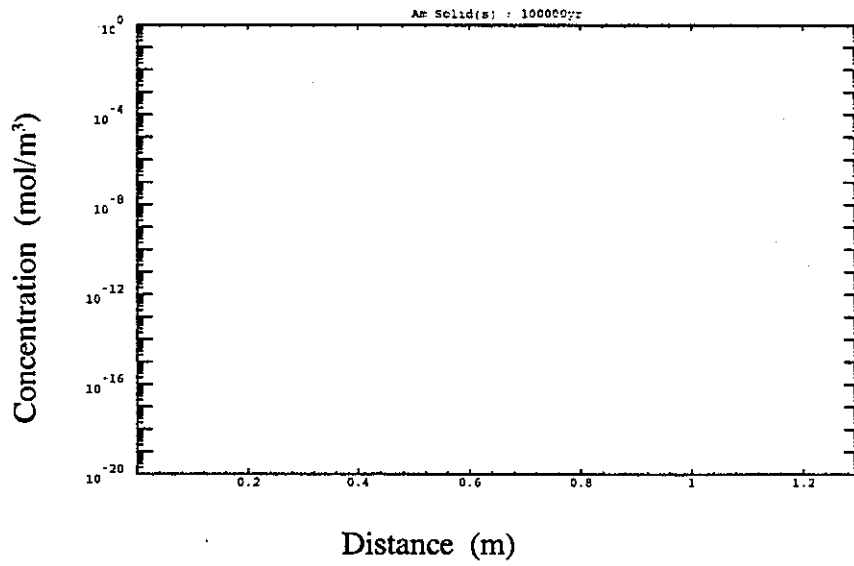
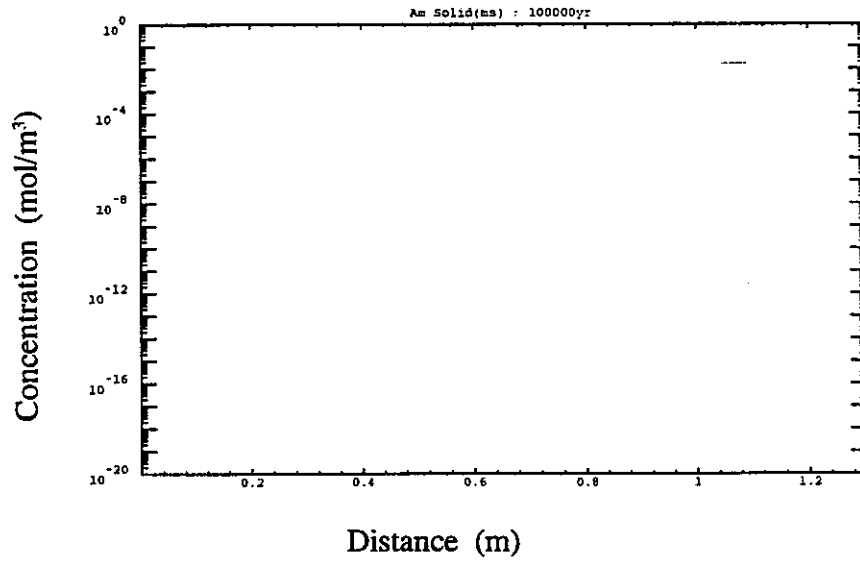
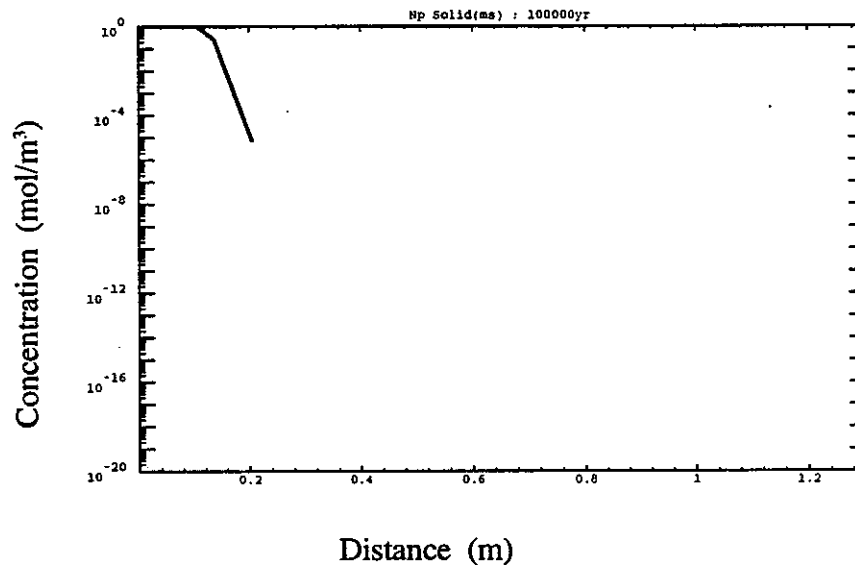


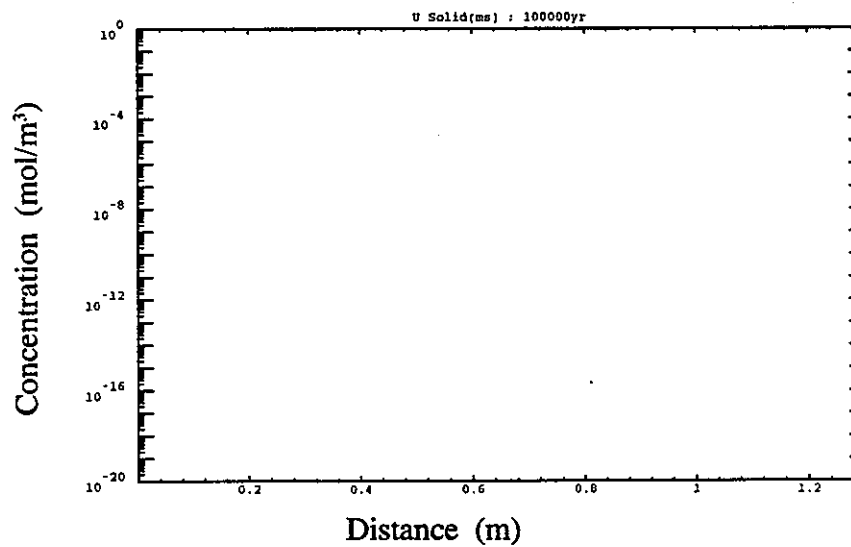
図 3.1.3-1 (20) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 安定相, 10 万年後)



Am-241

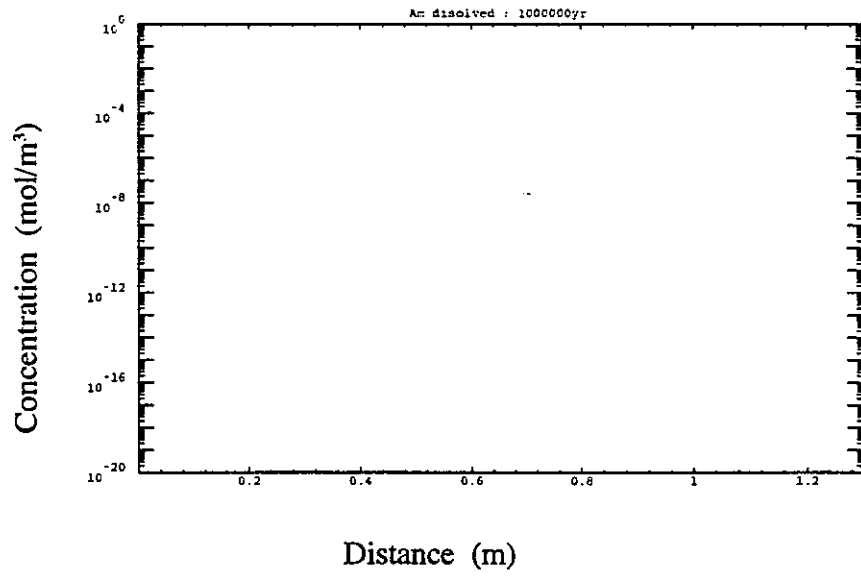


Np-237

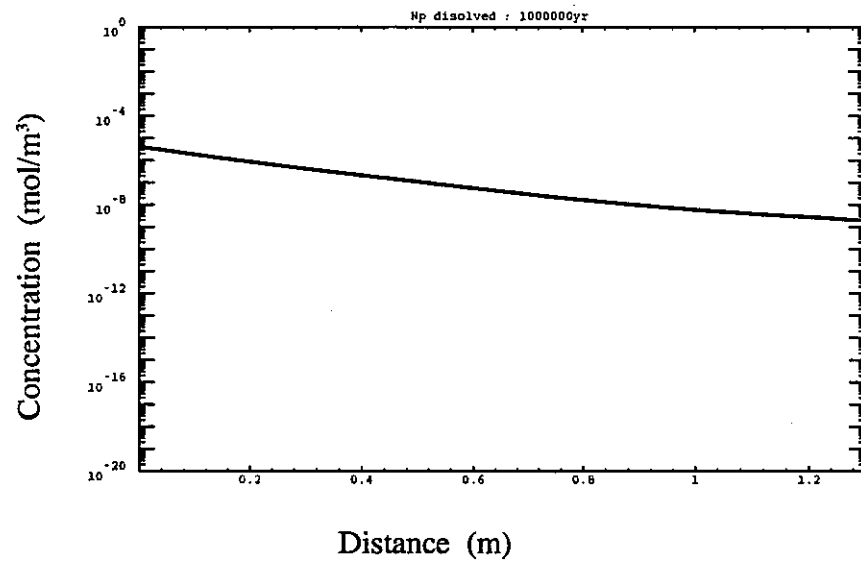


U-233

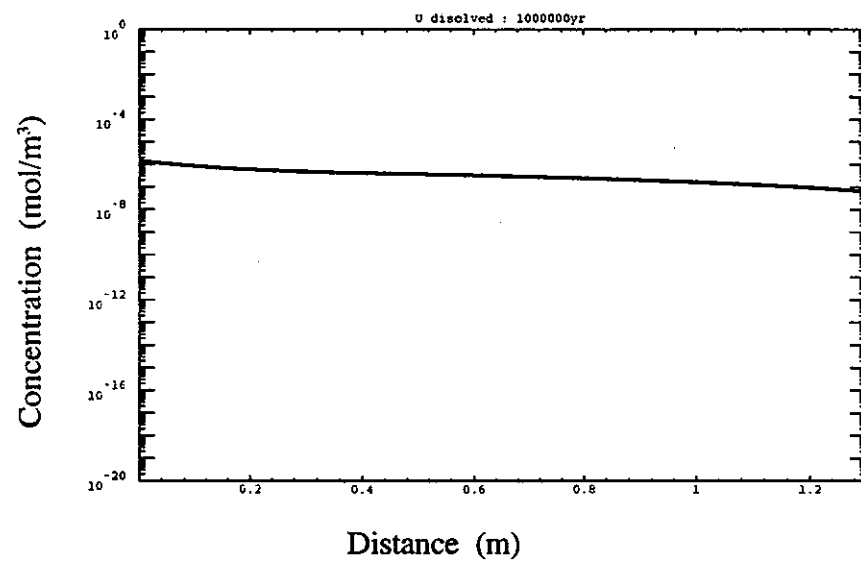
図 3.1.3-1 (21) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 準安定相, 10 万年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (22) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 溶存形, 100 万年後)



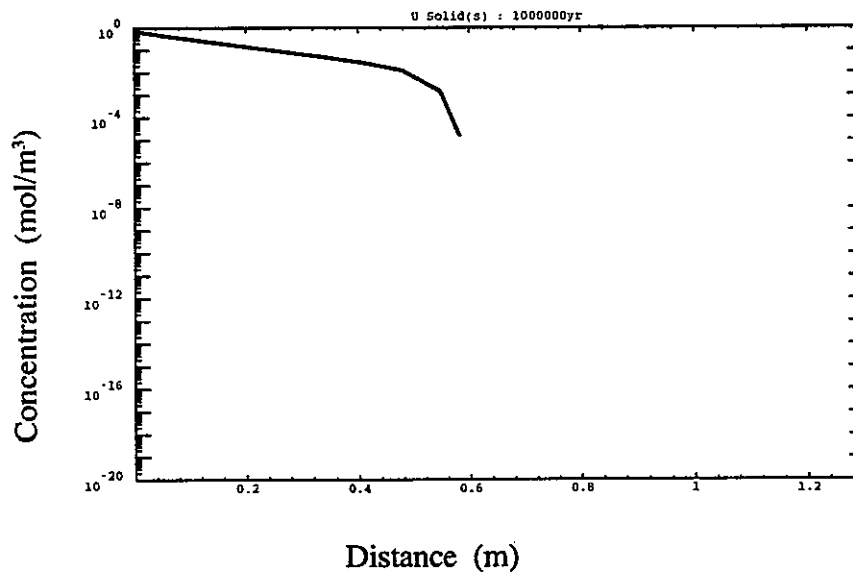
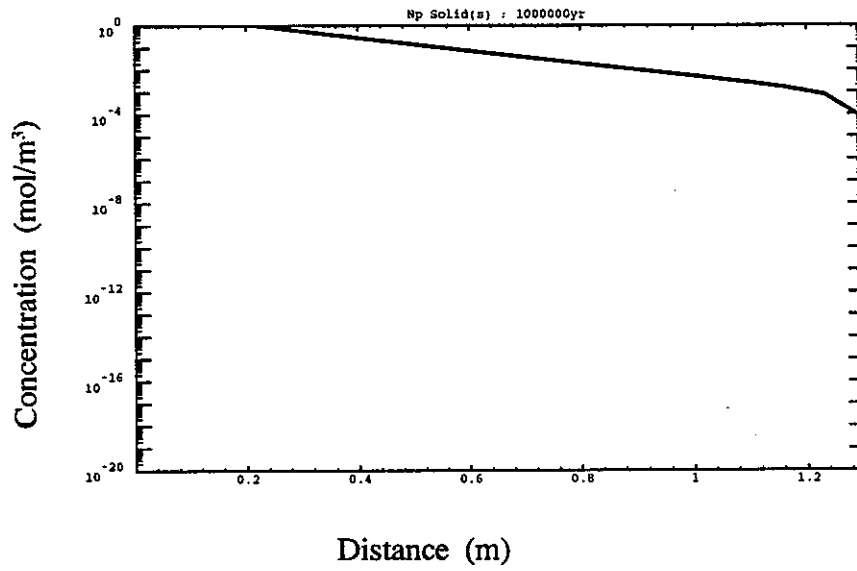
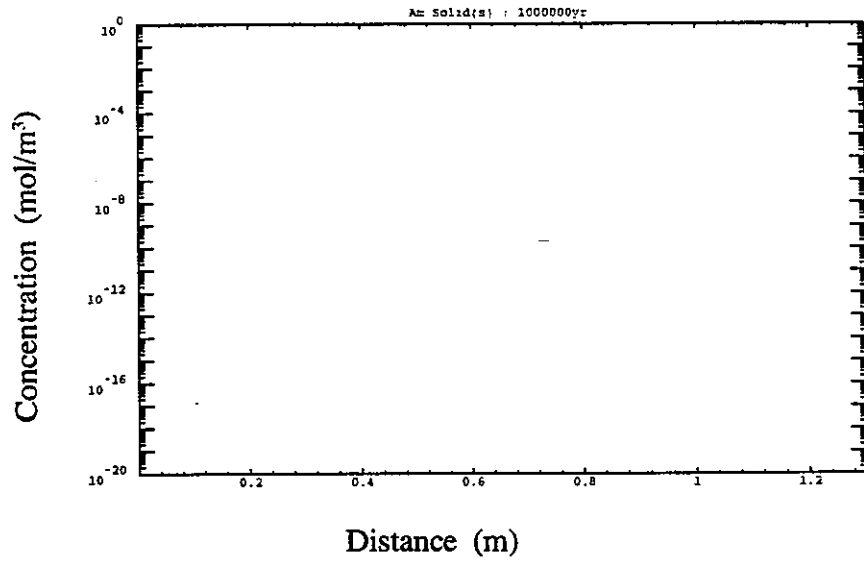
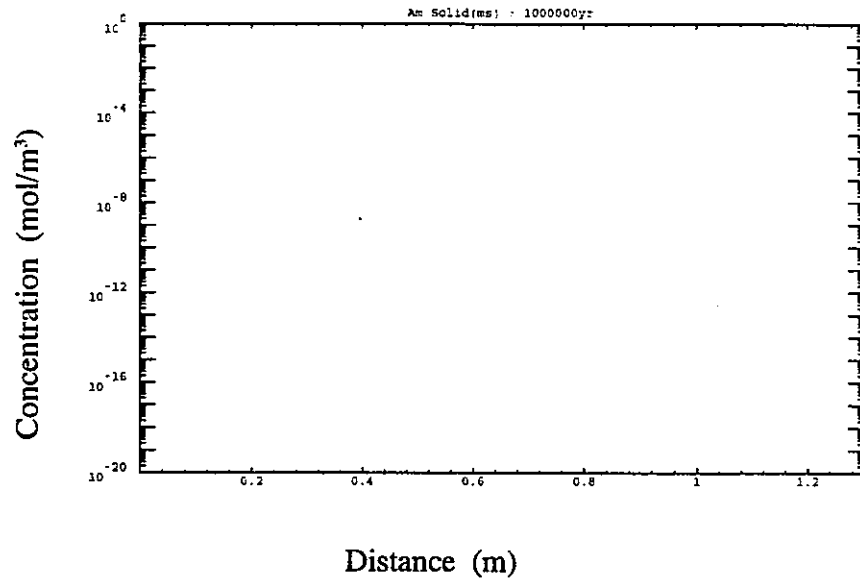
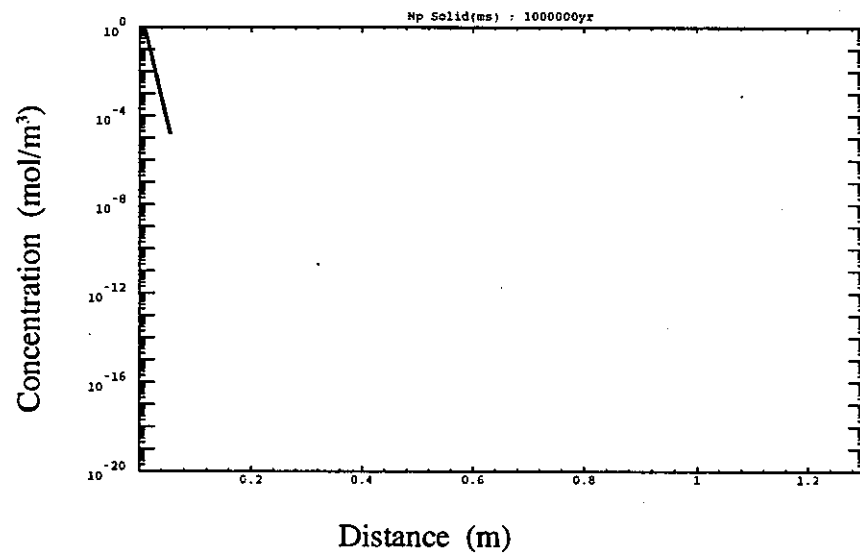


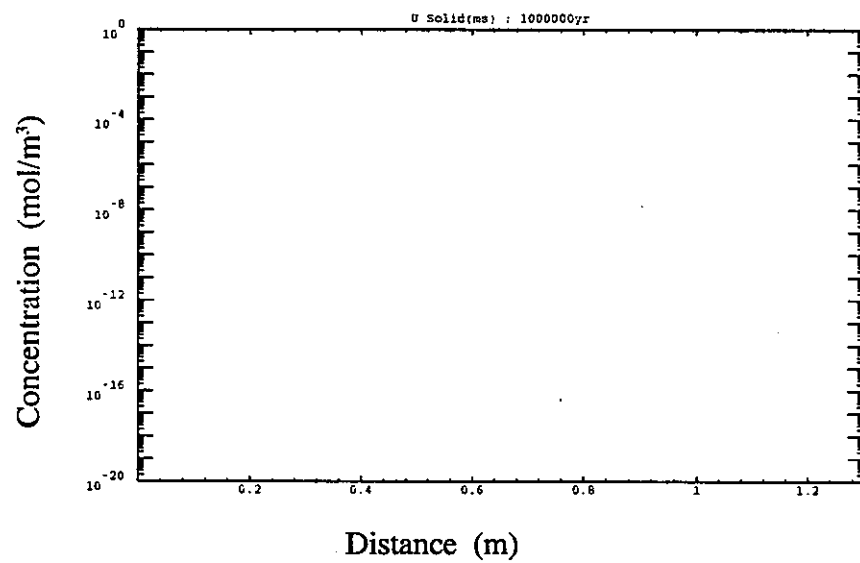
図 3.1.3-1 (23) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 安定相, 100 万年後)



Am-241

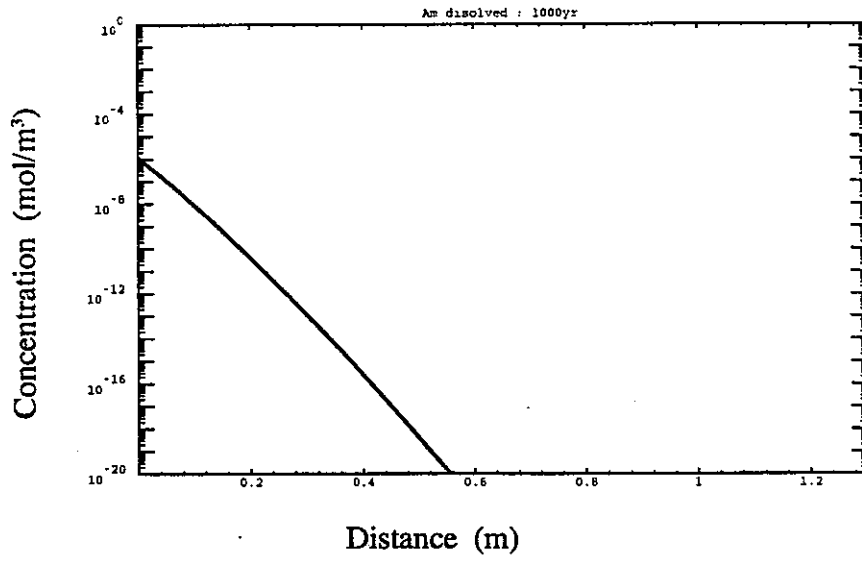


Np-237

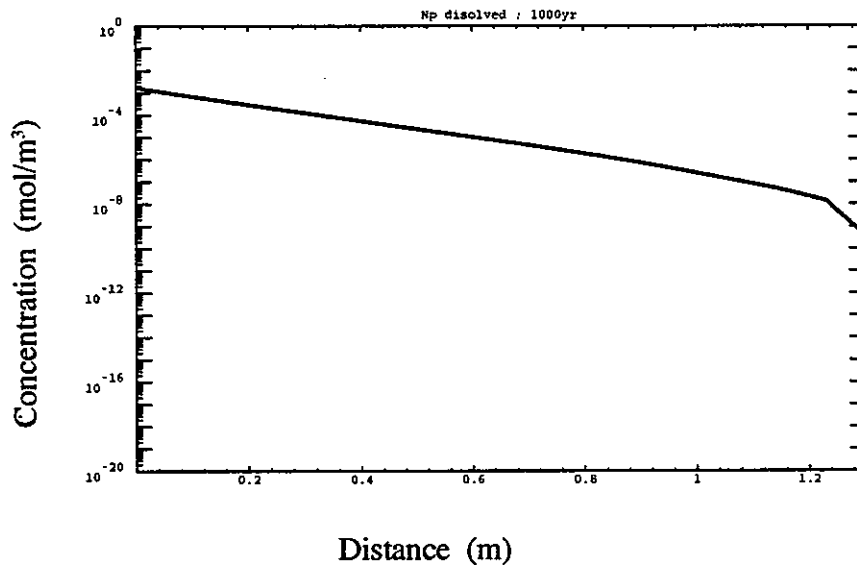


U-233

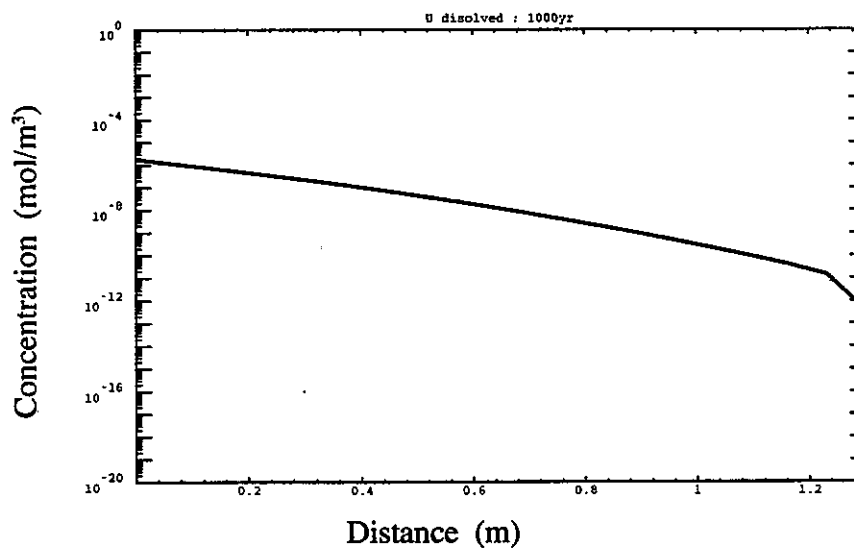
図 3.1.3-1 (24) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-2, 準安定相, 100 万年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (25) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 溶存形, 1,000 年後)

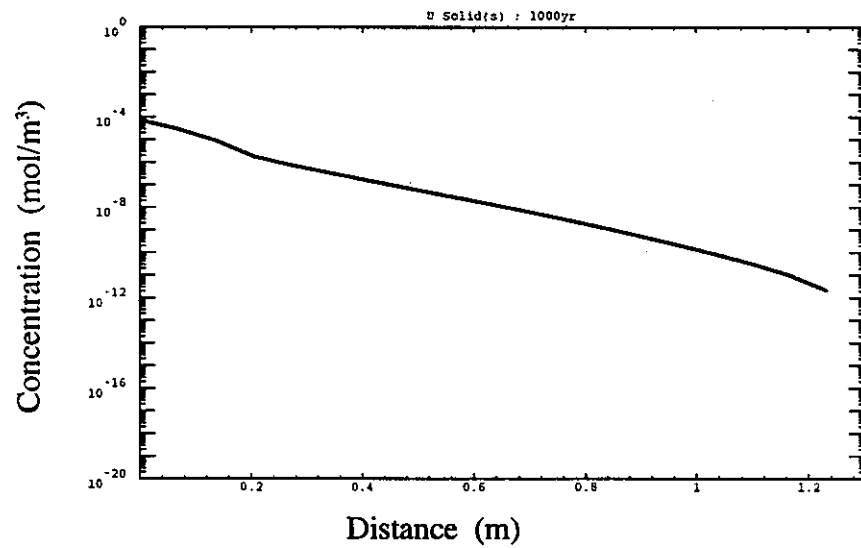
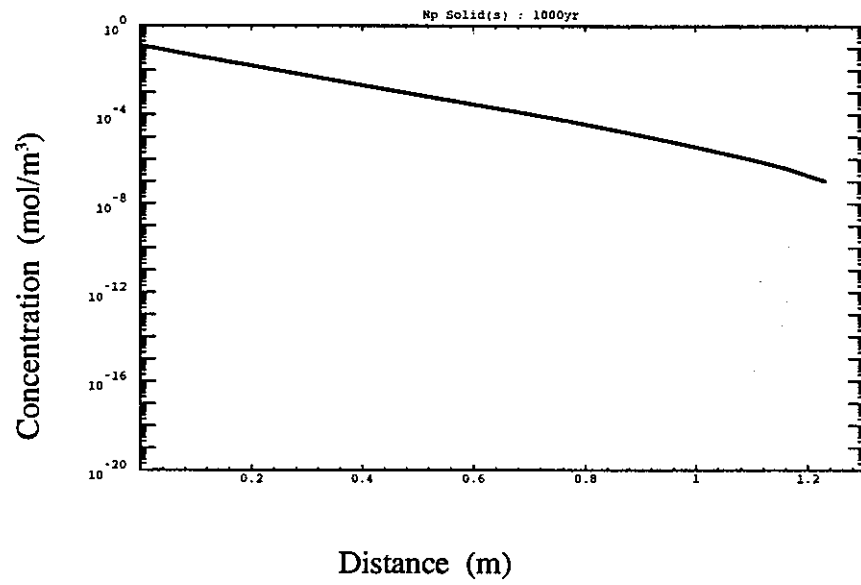
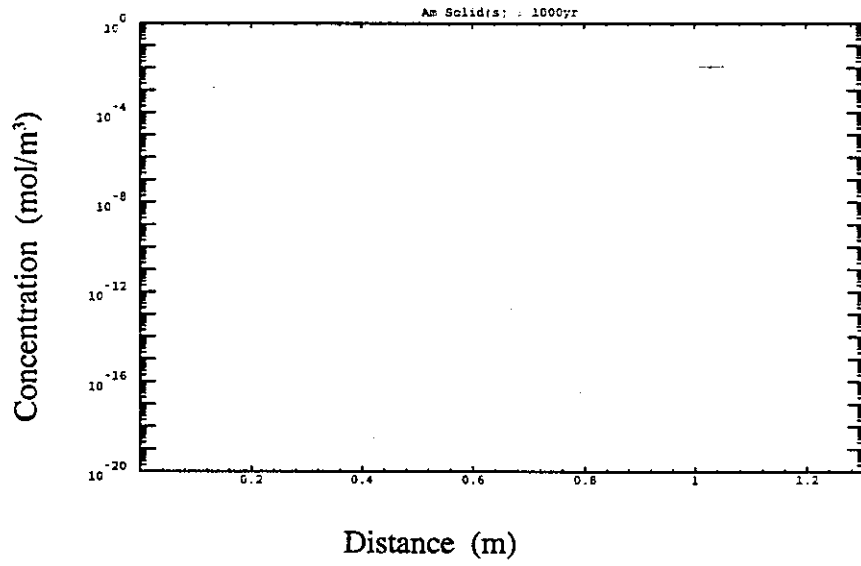
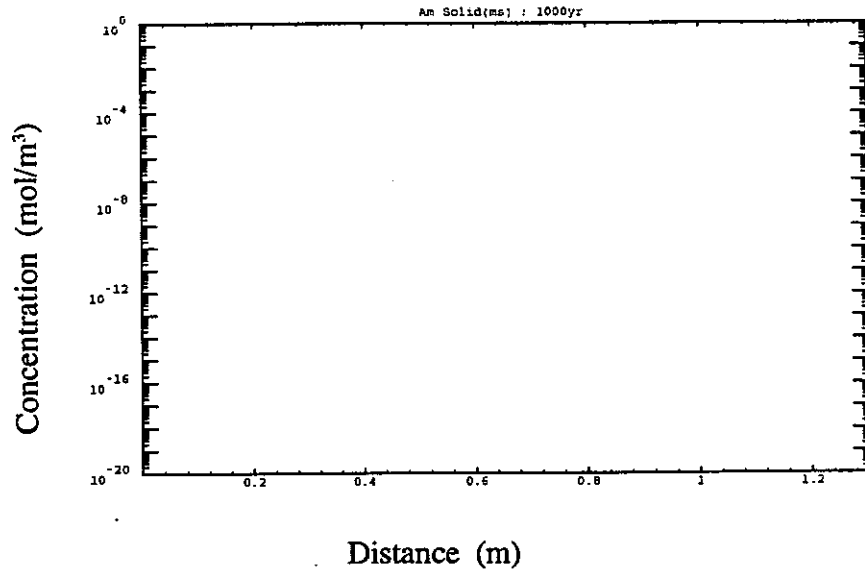
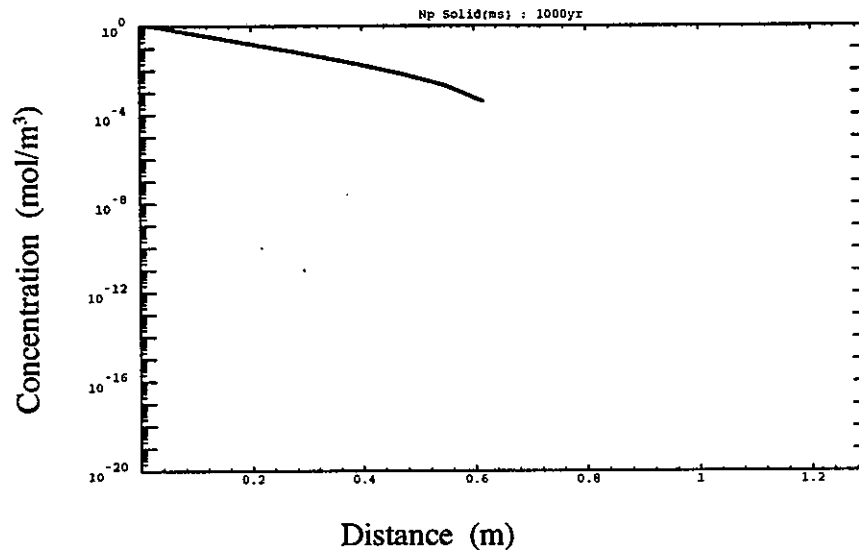


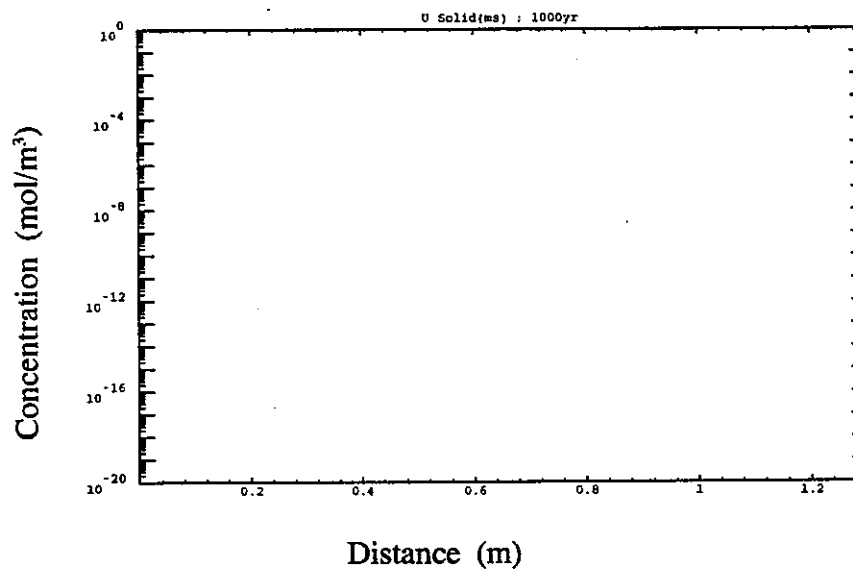
図 3.1.3-1 (26) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 安定相, 1,000 年後)



Am-241

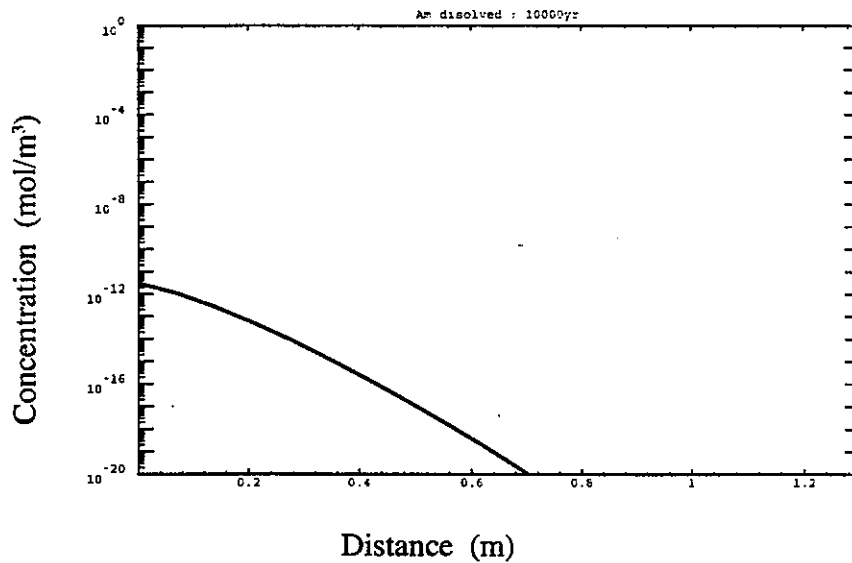


Np-237

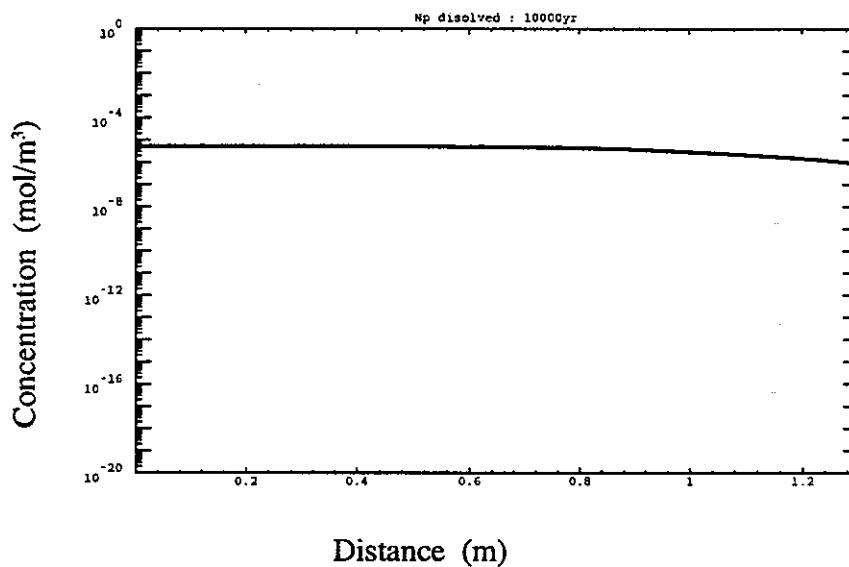


U-233

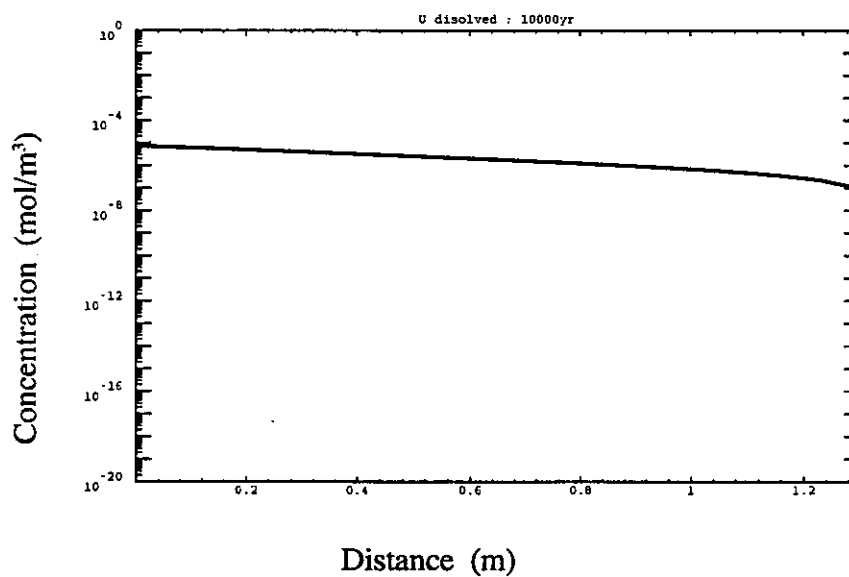
図 3.1.3-1 (27) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 準安定相, 1,000 年後)



Am-241

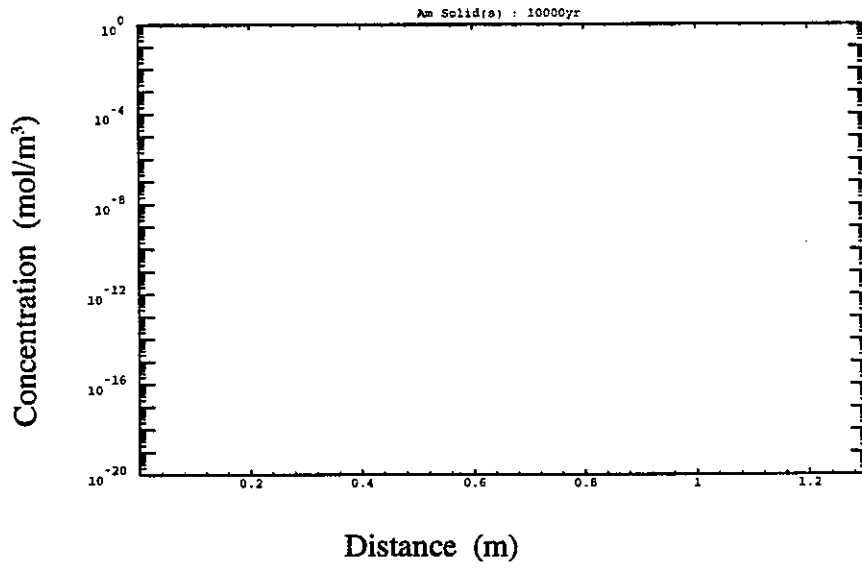


Np-237

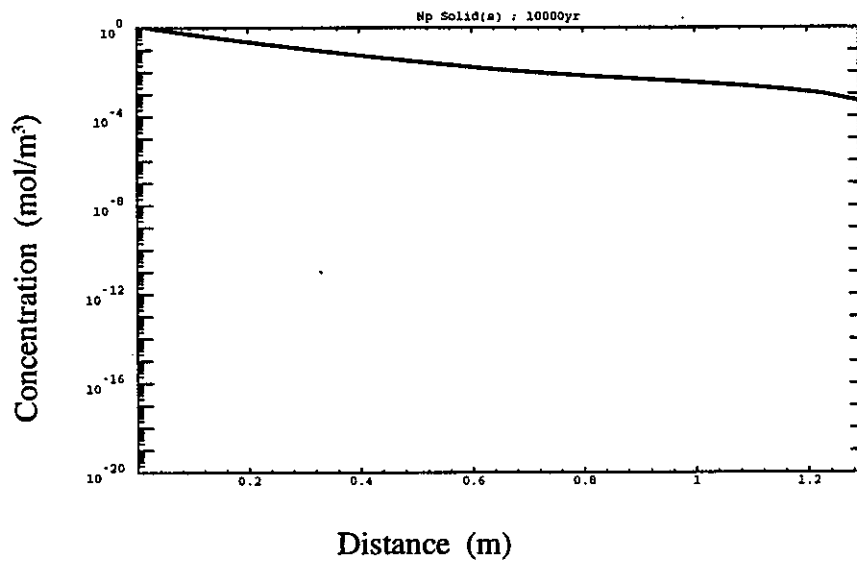


U-233

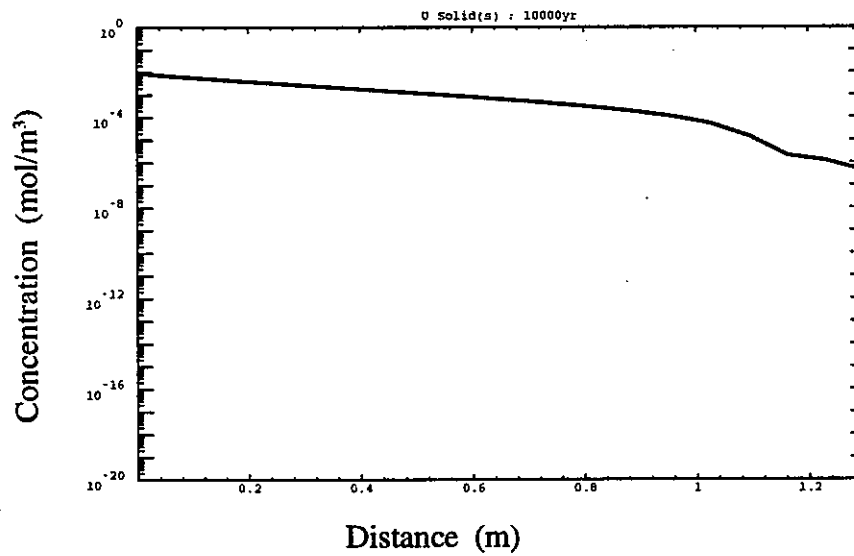
図 3.1.3-1 (28) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 溶存形, 10,000 年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (29) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 安定相, 10,000 年後)

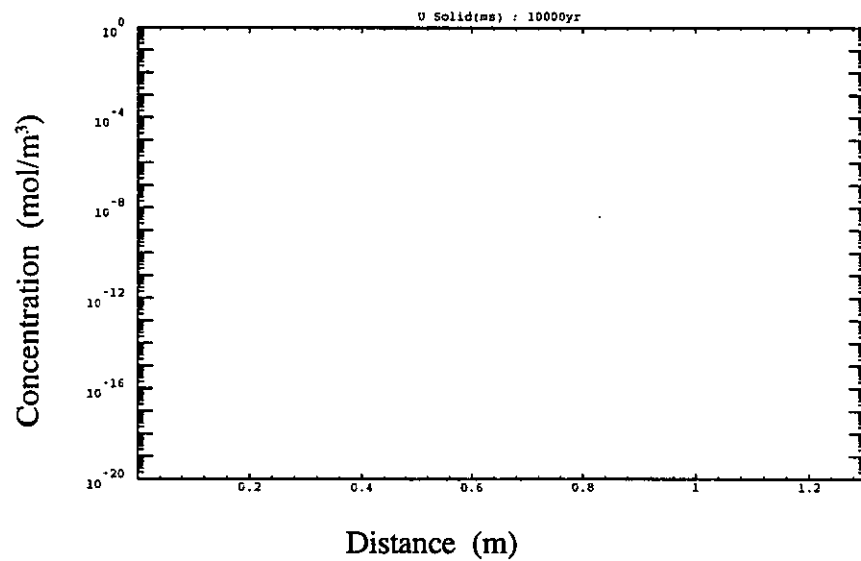
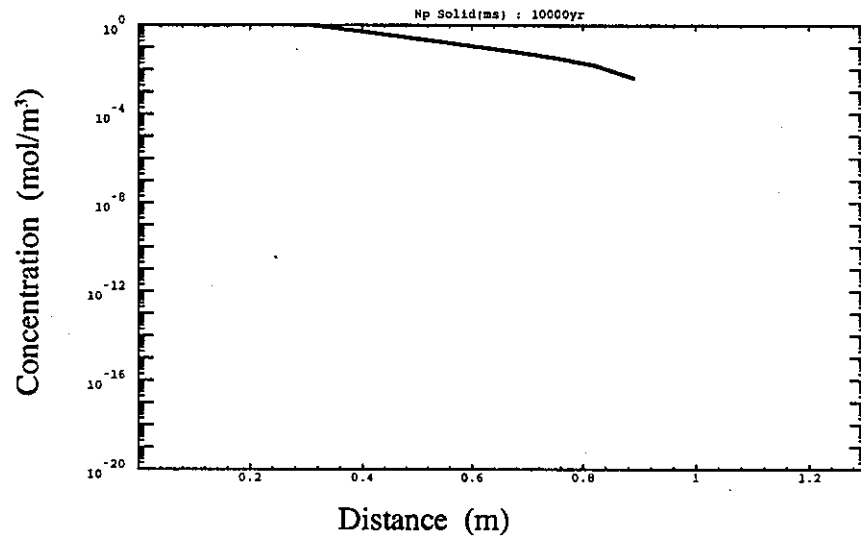
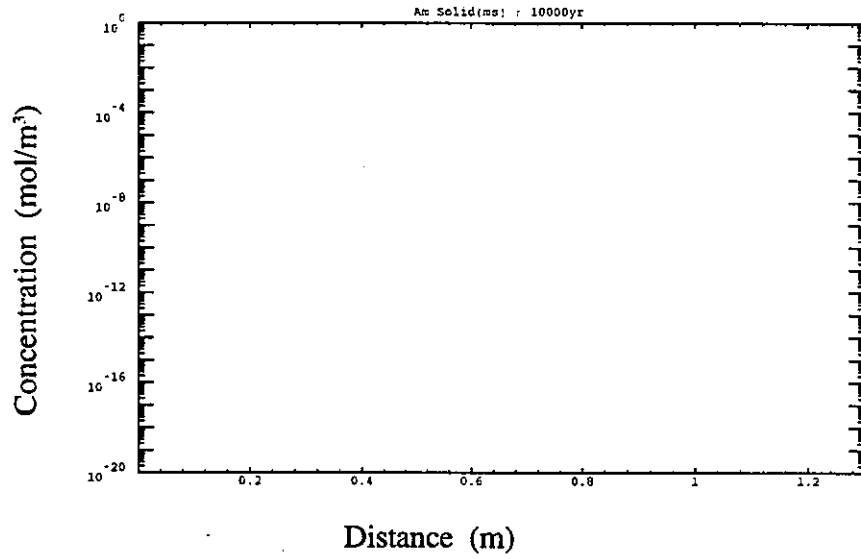
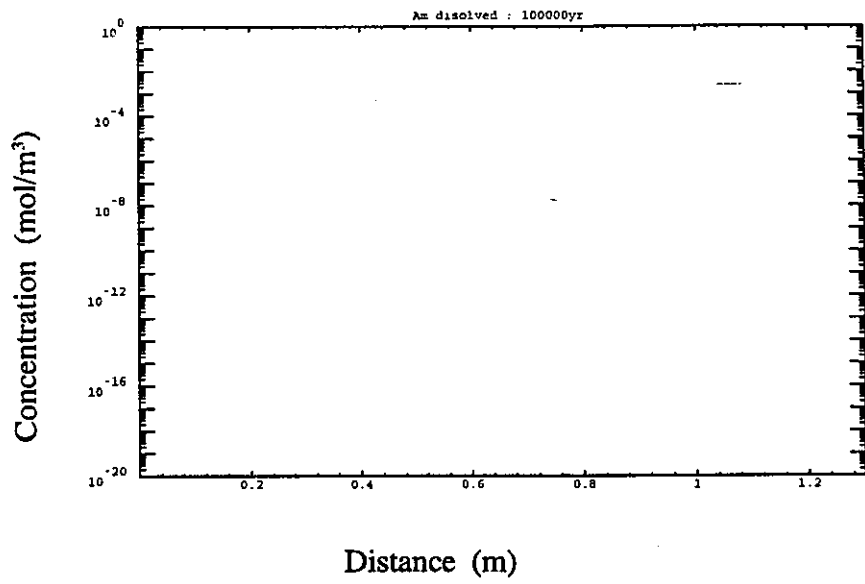
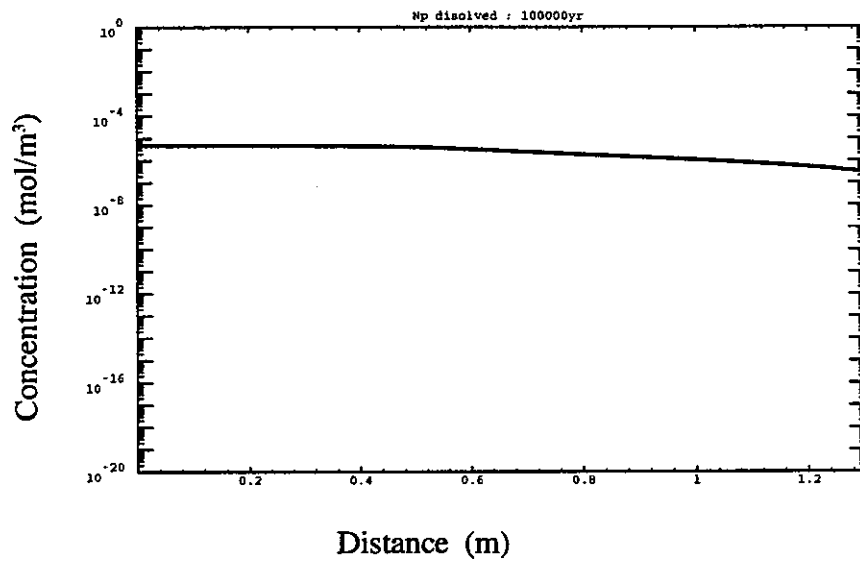


図 3.1.3-1 (30) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 準安定相, 10,000 年後)

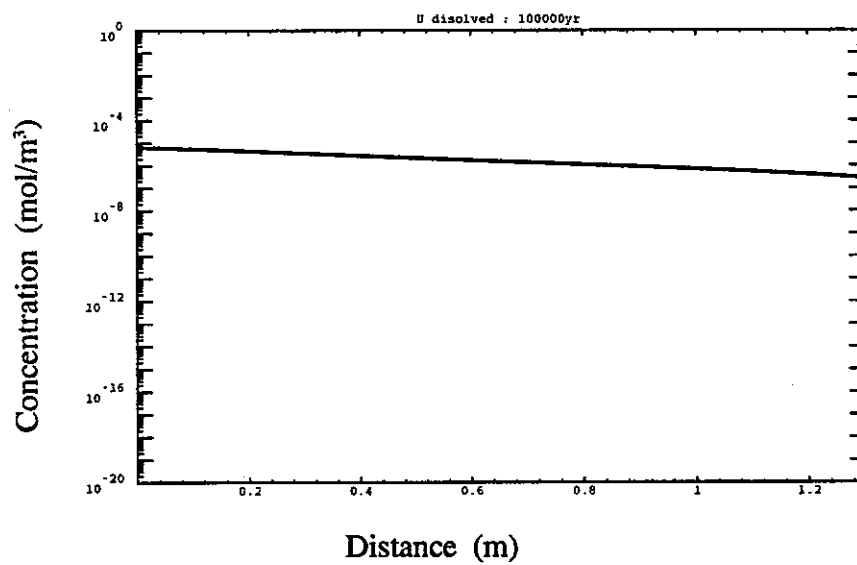




Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (31) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 溶存形, 10 万年後)

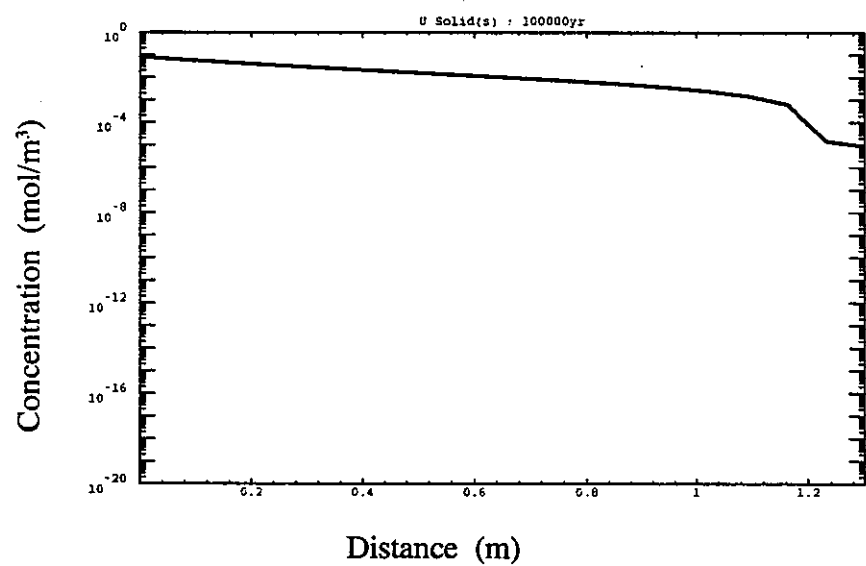
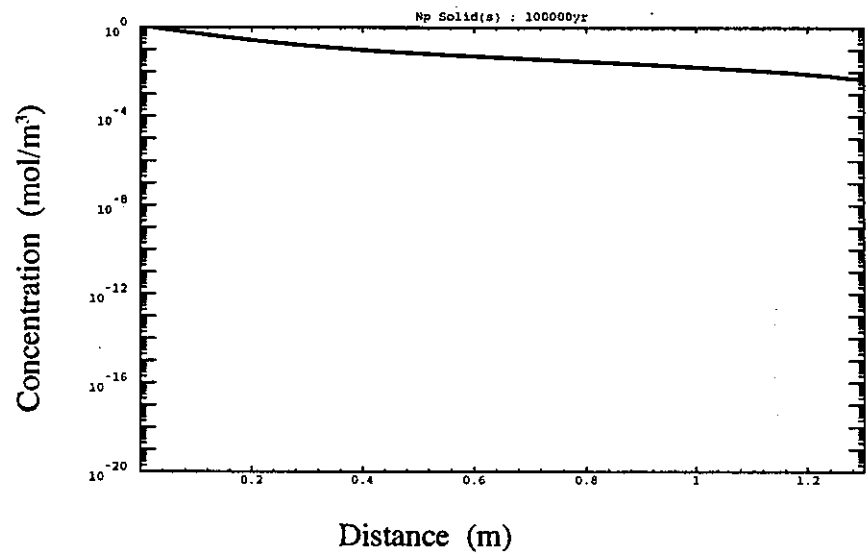
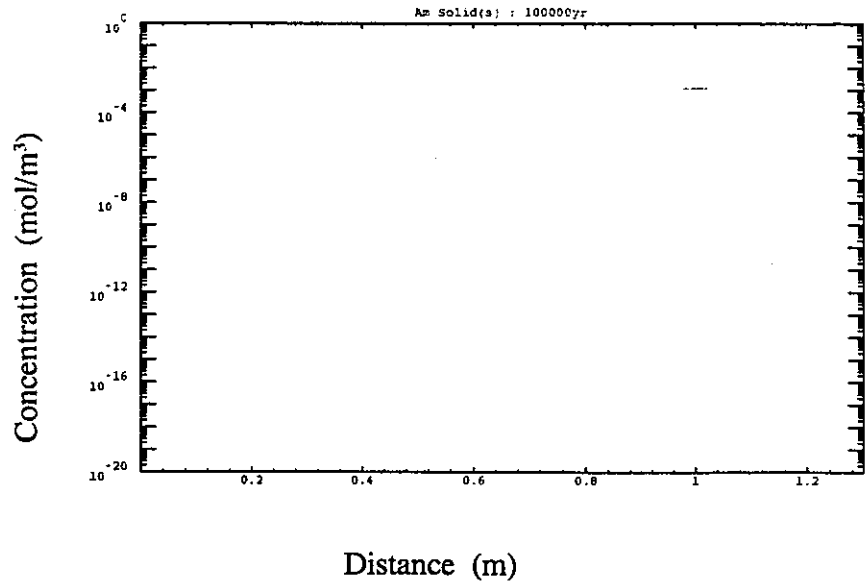
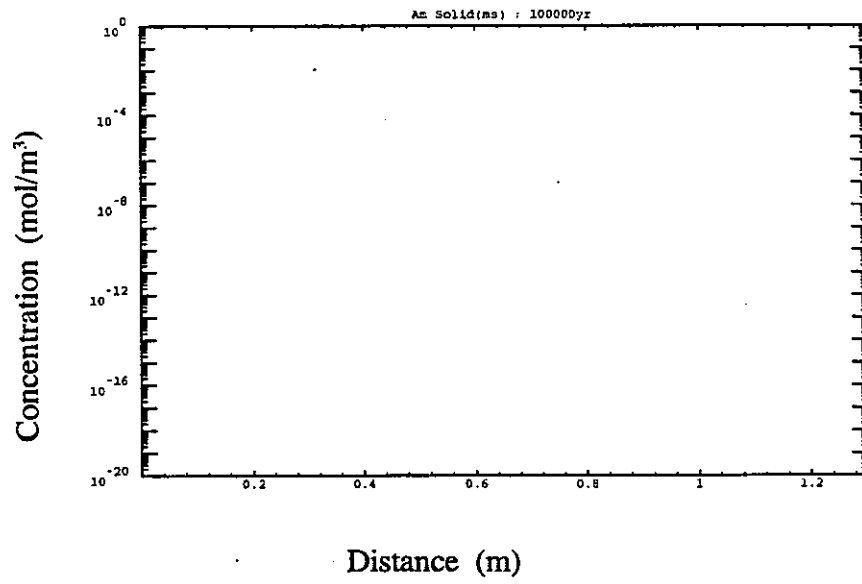
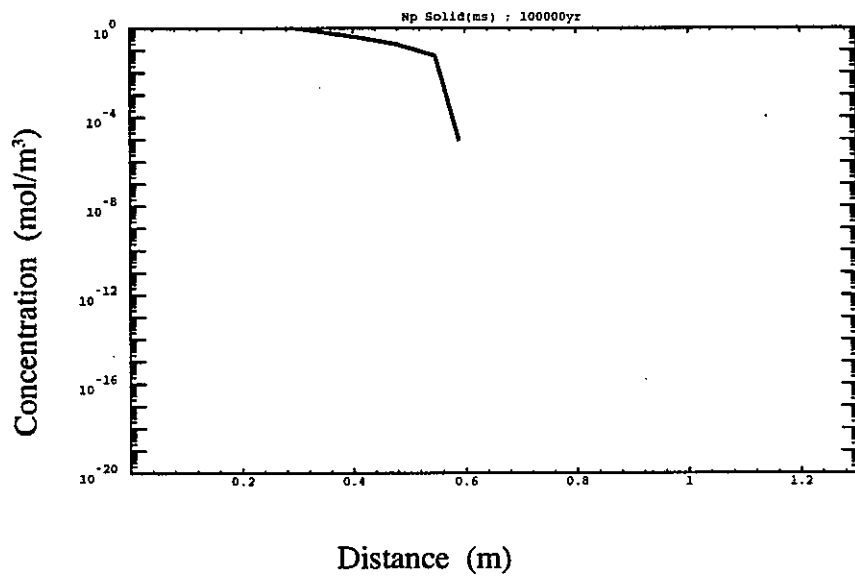


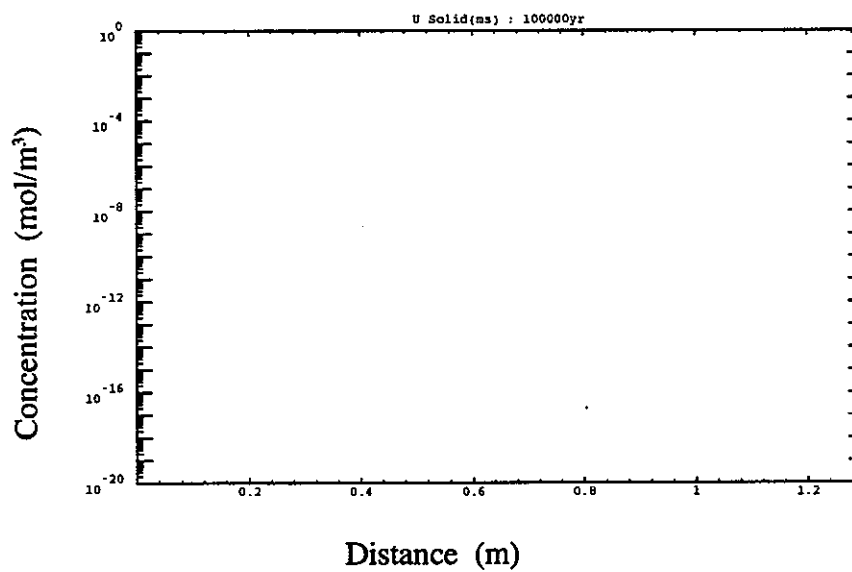
図 3.1.3-1 (32) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 安定相, 10 万年後)



Am-241

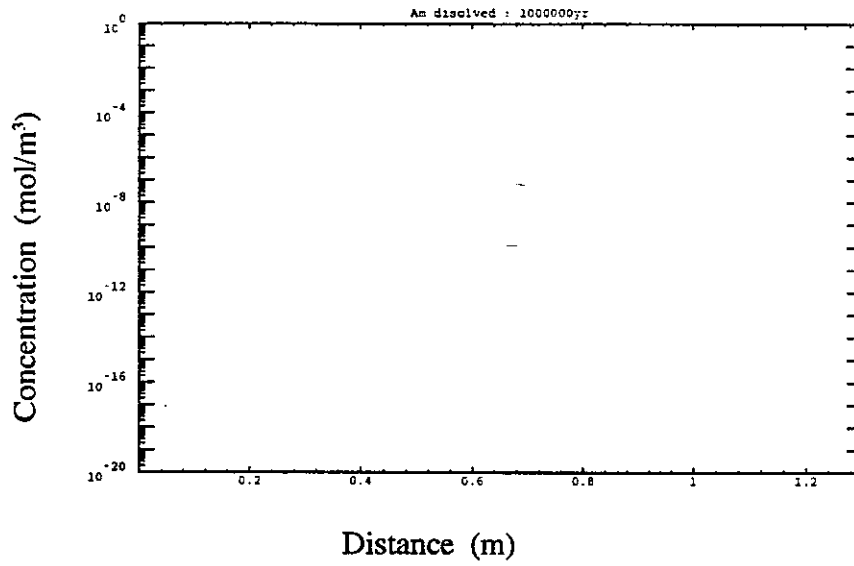


Np-237

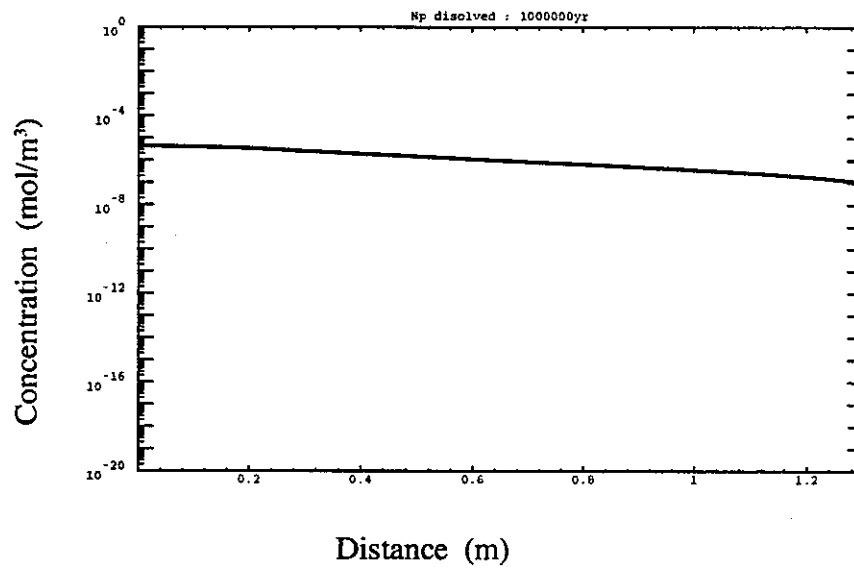


U-233

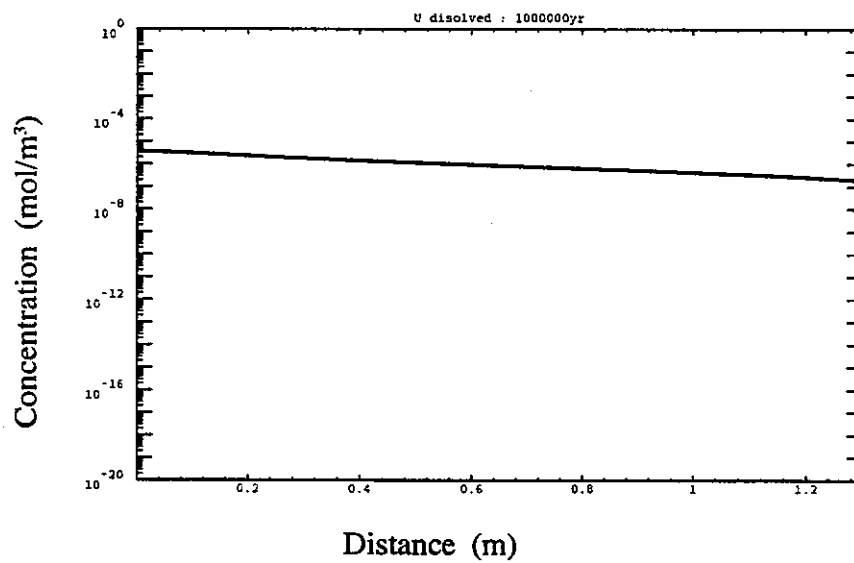
図 3. 1. 3-1 (33) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 準安定相, 10 万年後)



Am-241

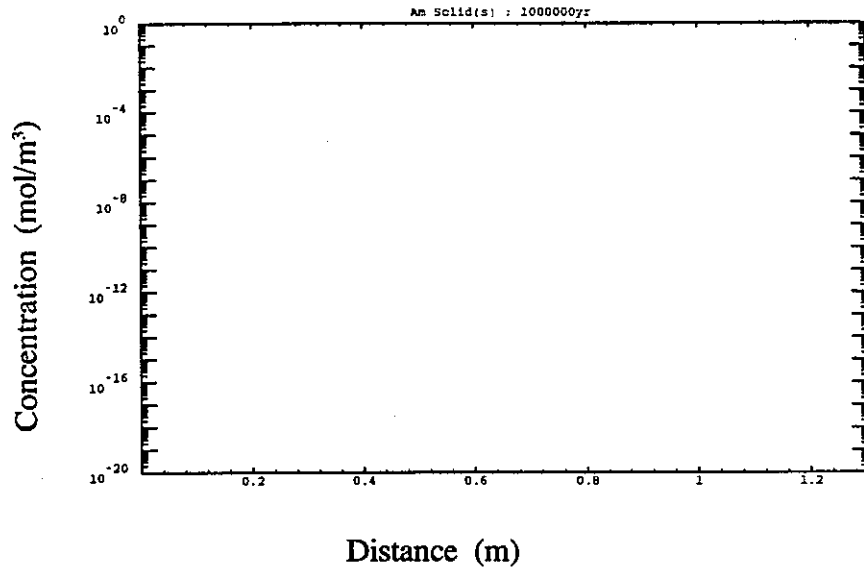


Np-237

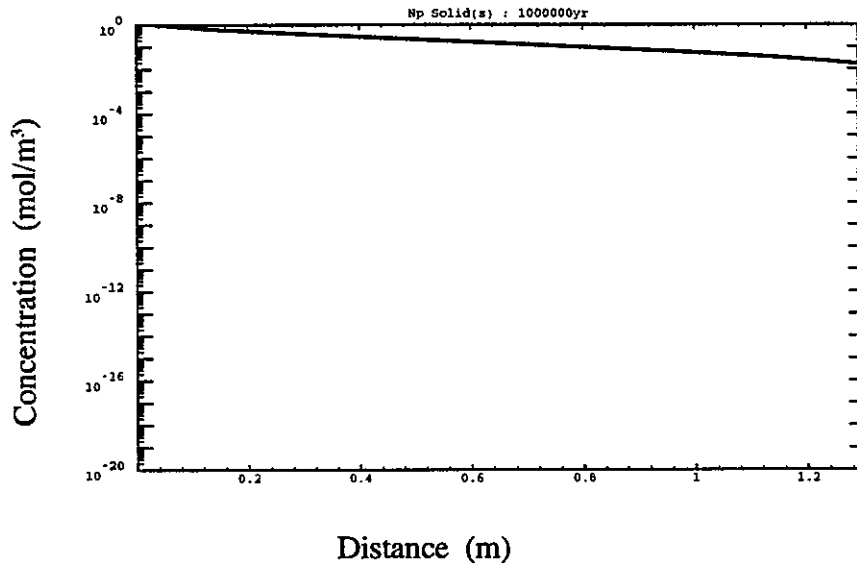


U-233

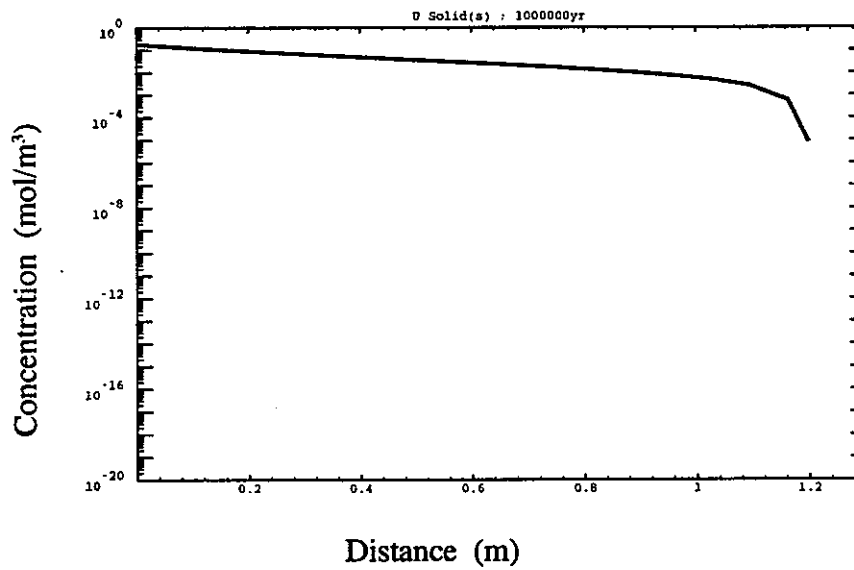
図 3.1.3-1 (34) 人工バリア中の核種濃度(ケース A-3, 溶存形, 100 万年後)



Am-241

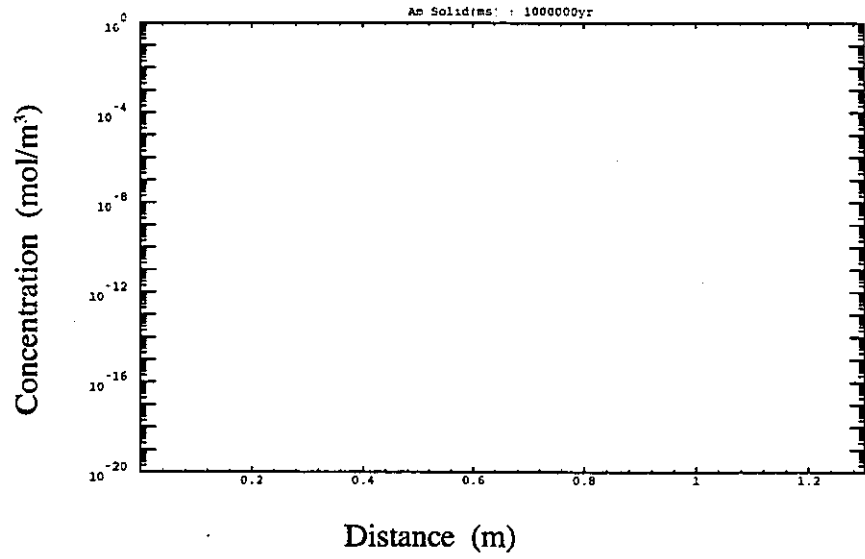


Np-237

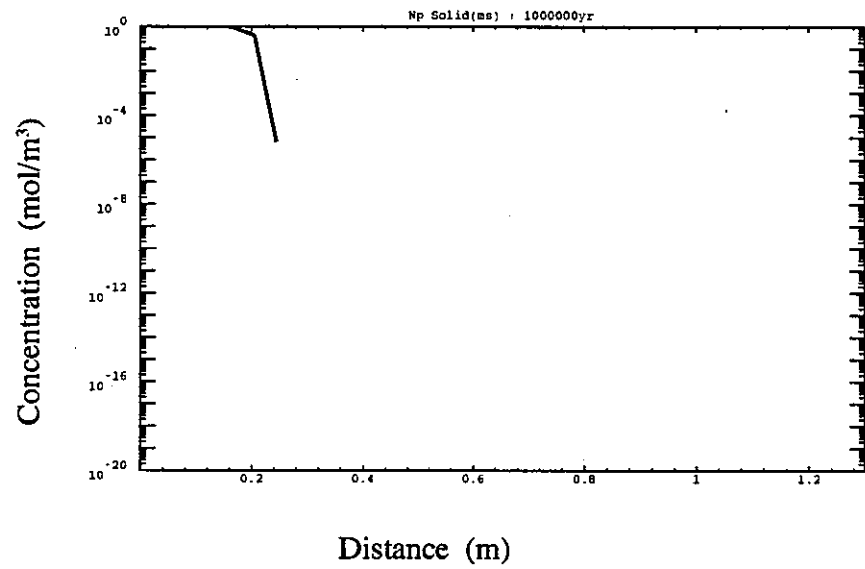


U-233

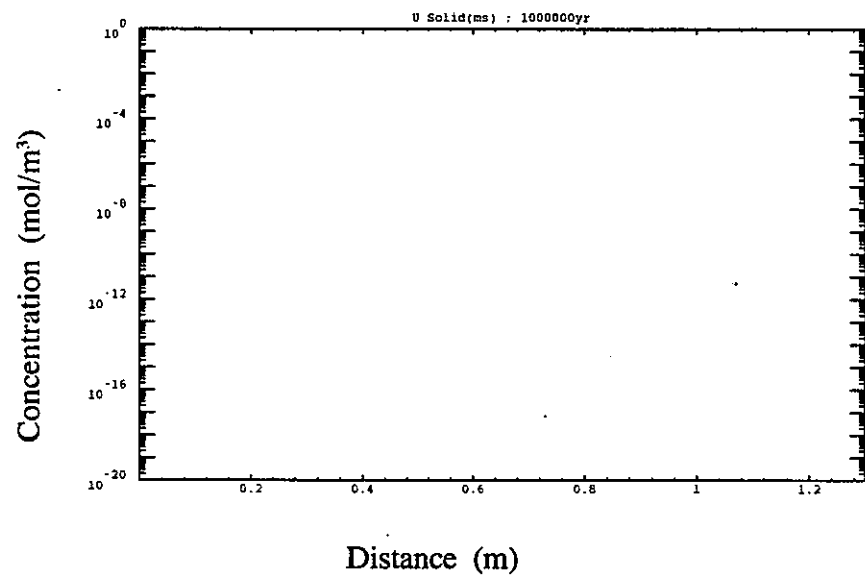
図 3.1.3-1 (35) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-3, 安定相, 100 万年後)



Am-241

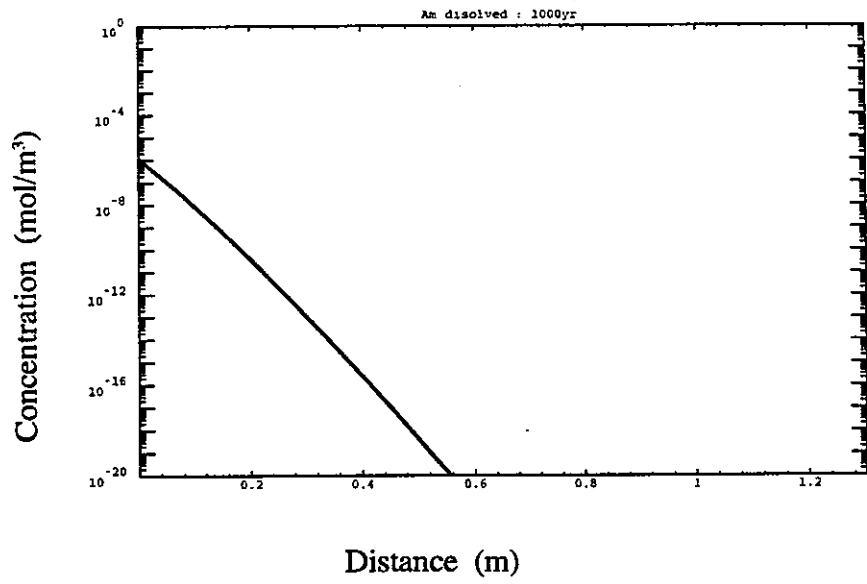


Np-237

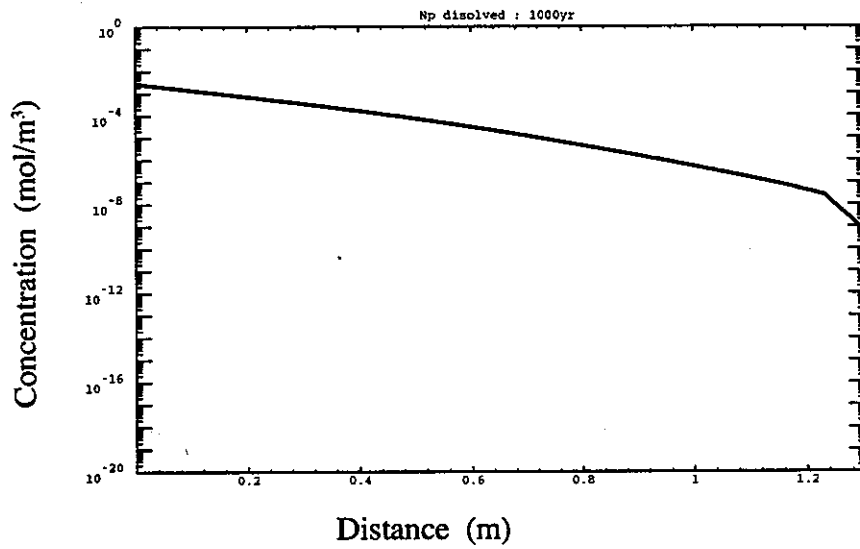


U-233

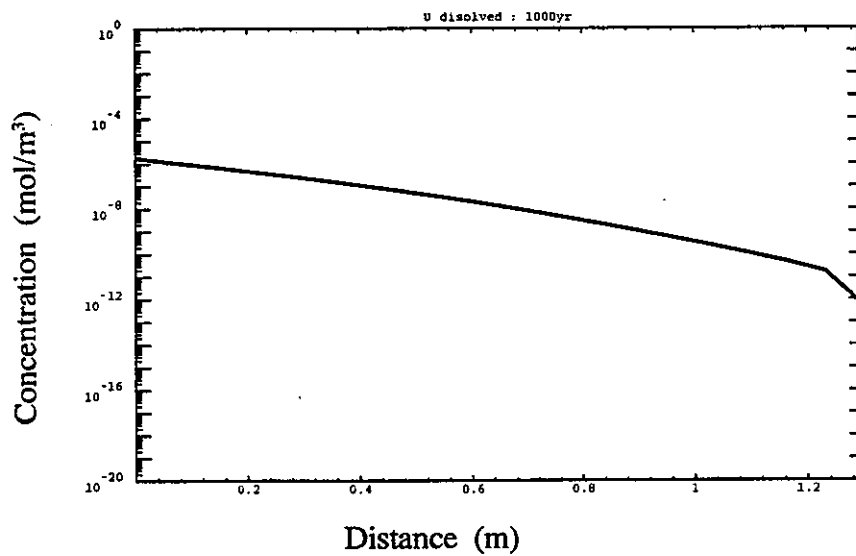
図 3.1.3-1 (36) 人工バリア中の核種濃度(ケース A-3, 準安定相, 100 万年後)



Am-241

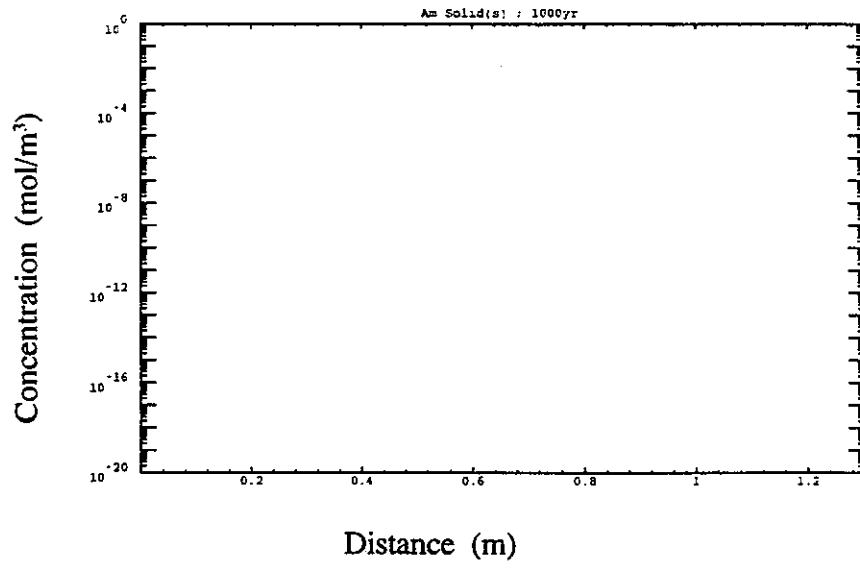


Np-237

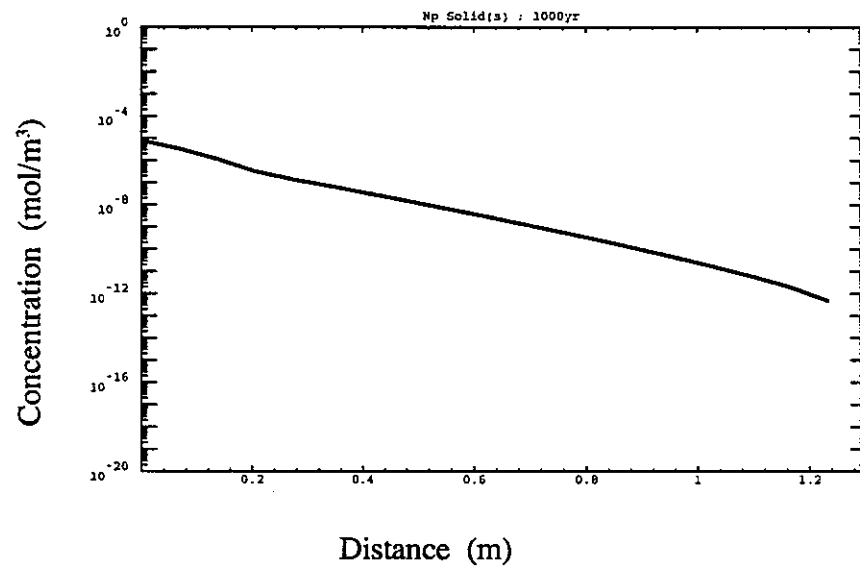


U-233

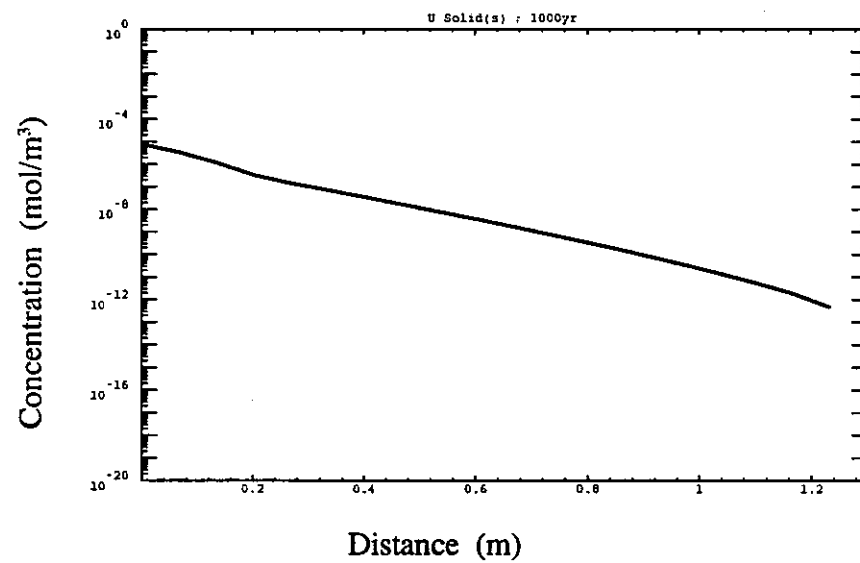
図 3.1.3-1 (37) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 溶存形, 1,000 年後)



Am-241



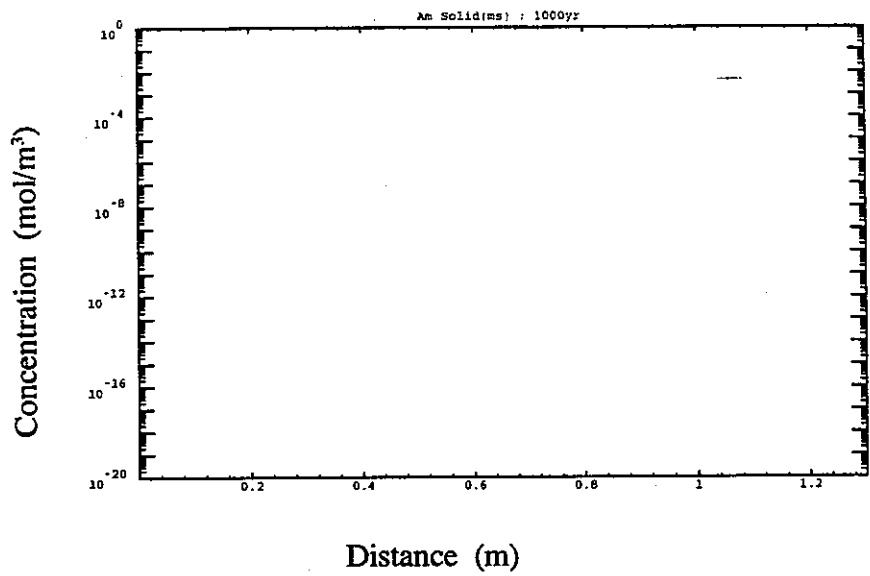
Np-237



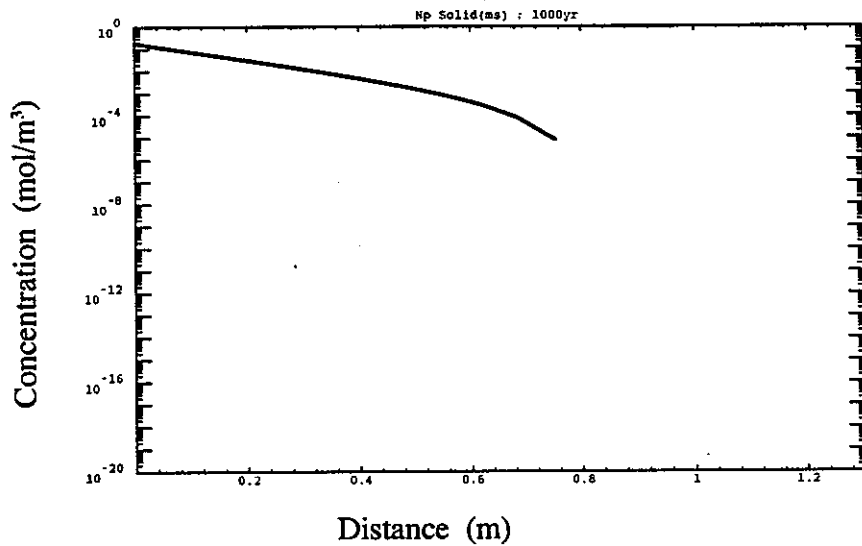
U-233

図 3.1.3-1 (38) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 安定相, 1,000 年後)

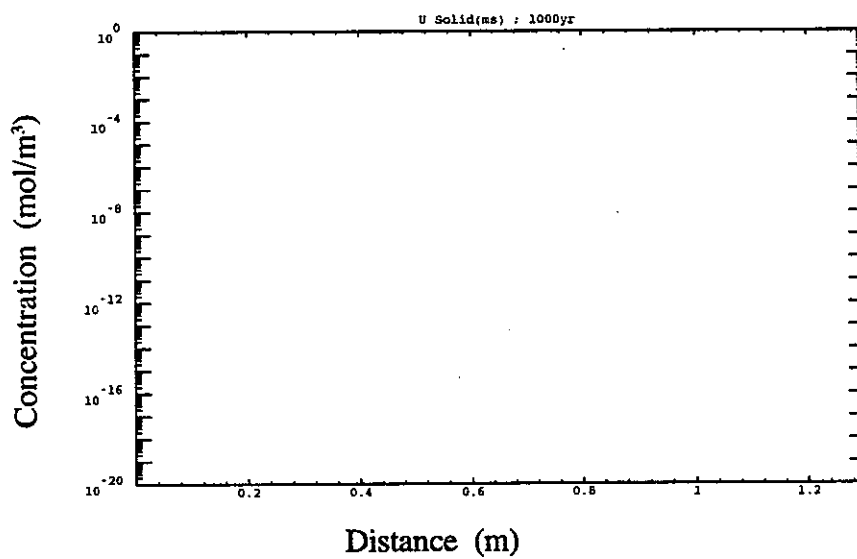




Am-241

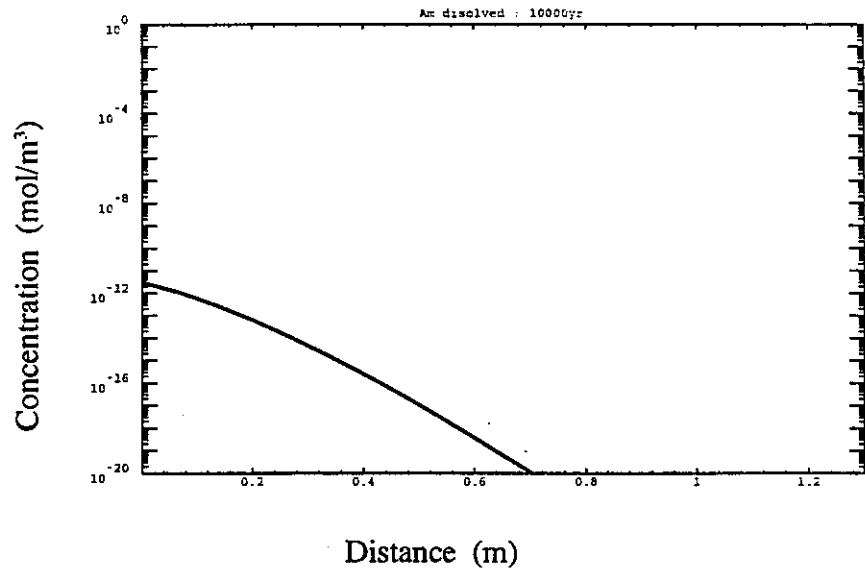


Np-237

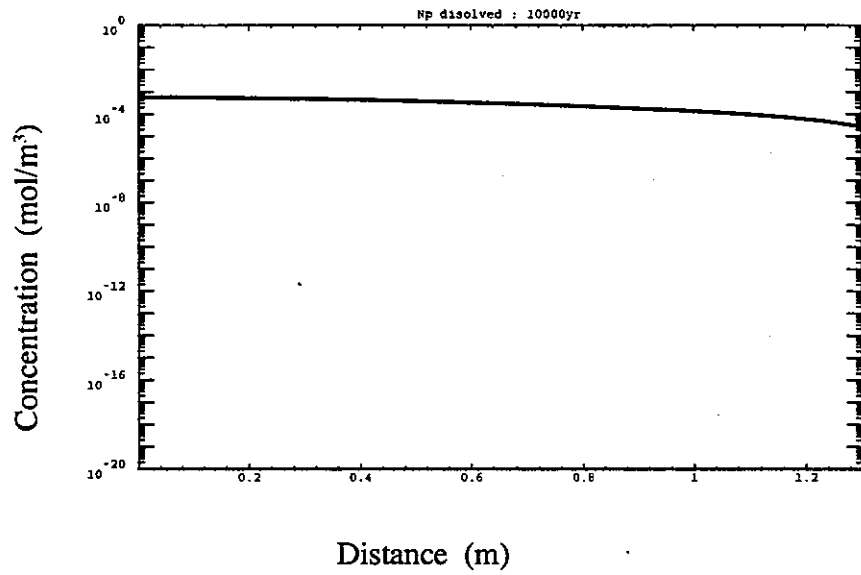


U-233

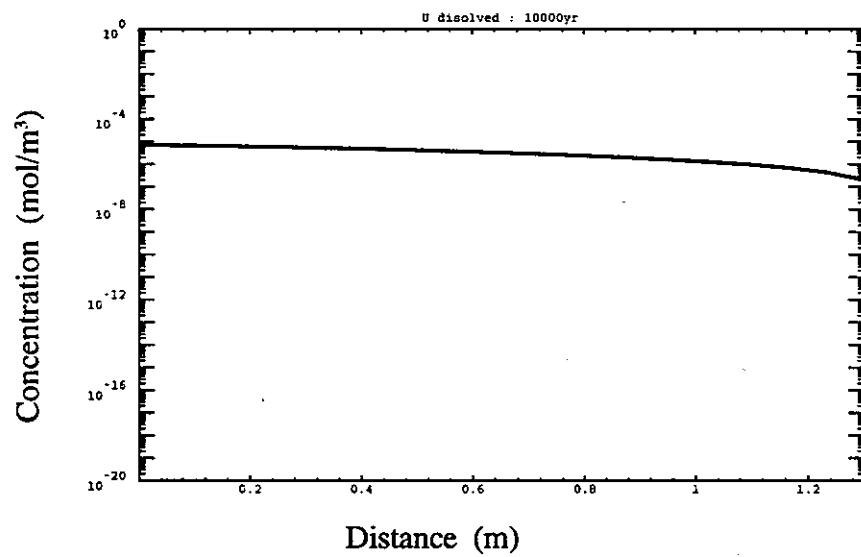
図 3.1.3-1 (39) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 準安定相, 1,000 年後)



Am-241

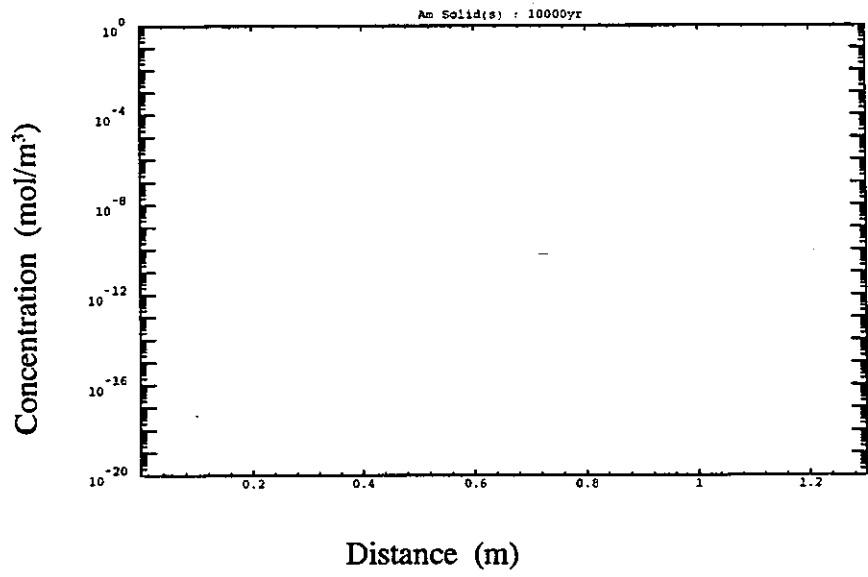


Np-237

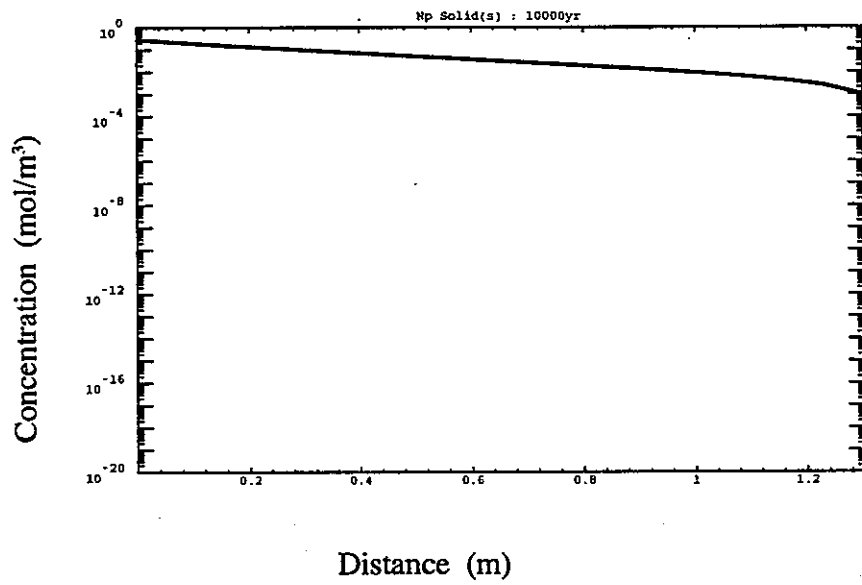


U-233

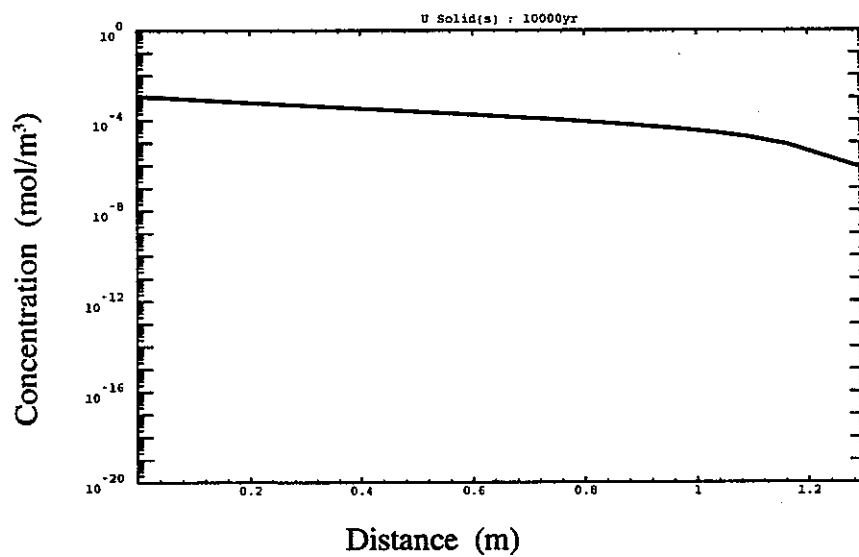
図 3.1.3-1 (40) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 溶存形, 10,000 年後)



Am-241

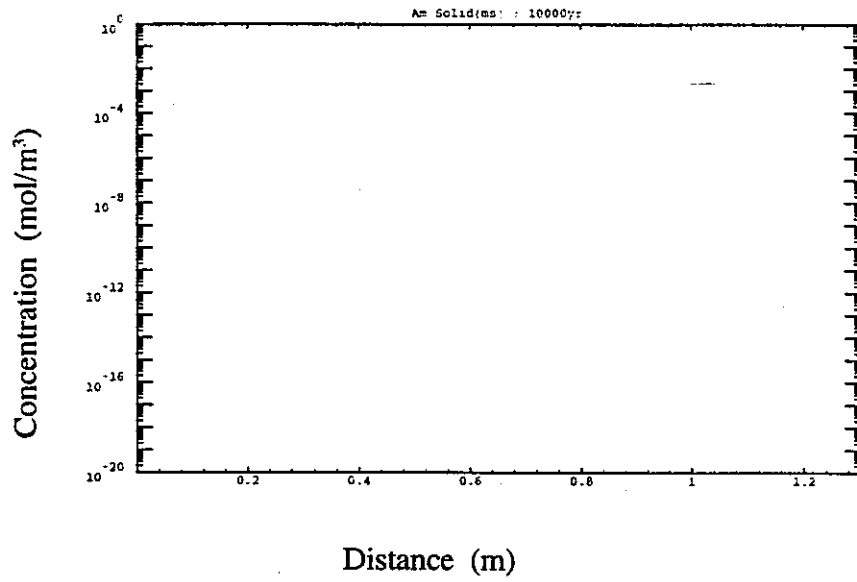


Np-237

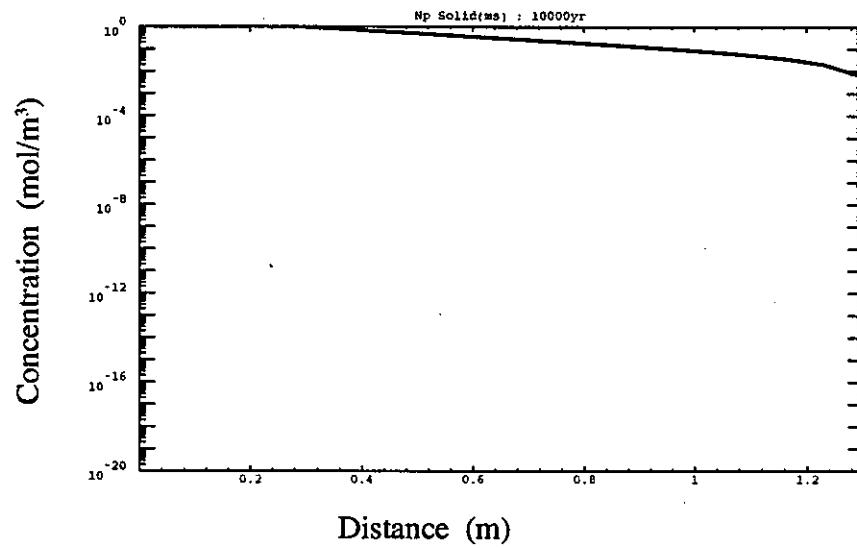


U-233

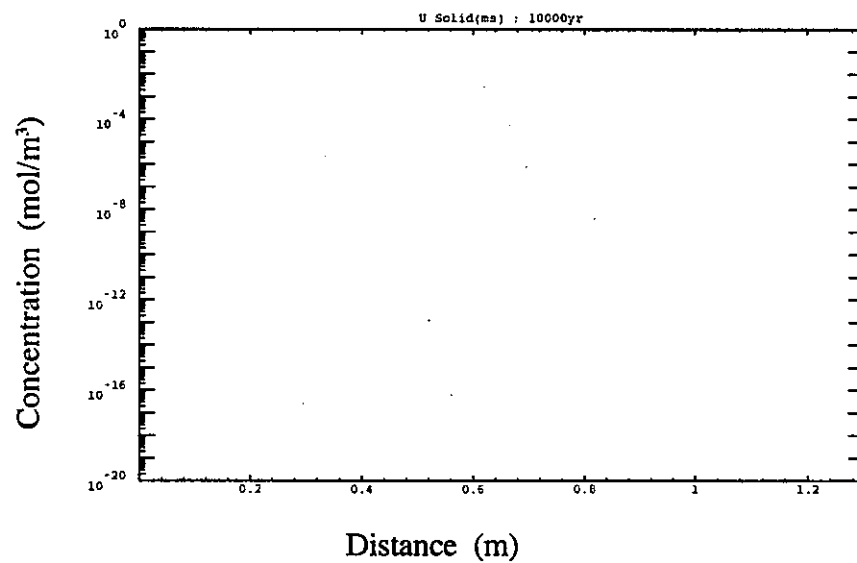
図 3.1.3-1 (41) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 安定相, 10,000 年後)



Am-241

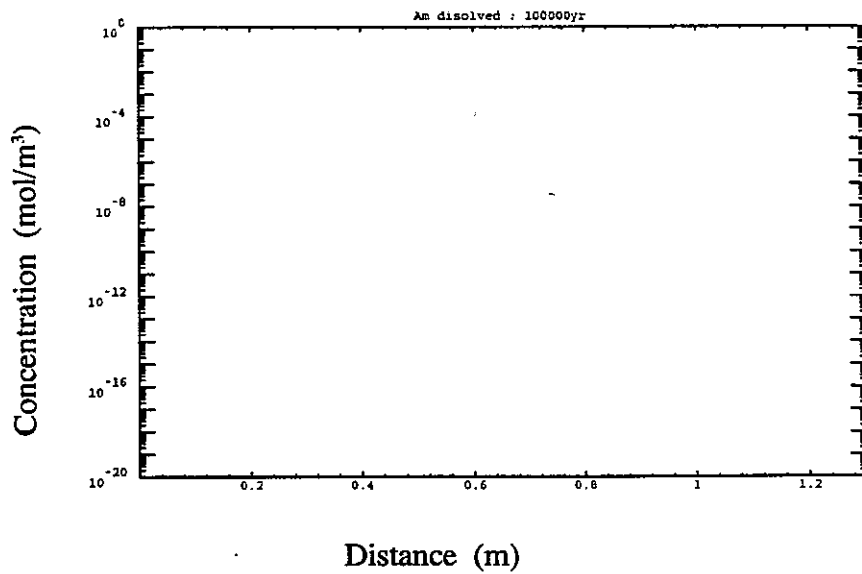


Np-237

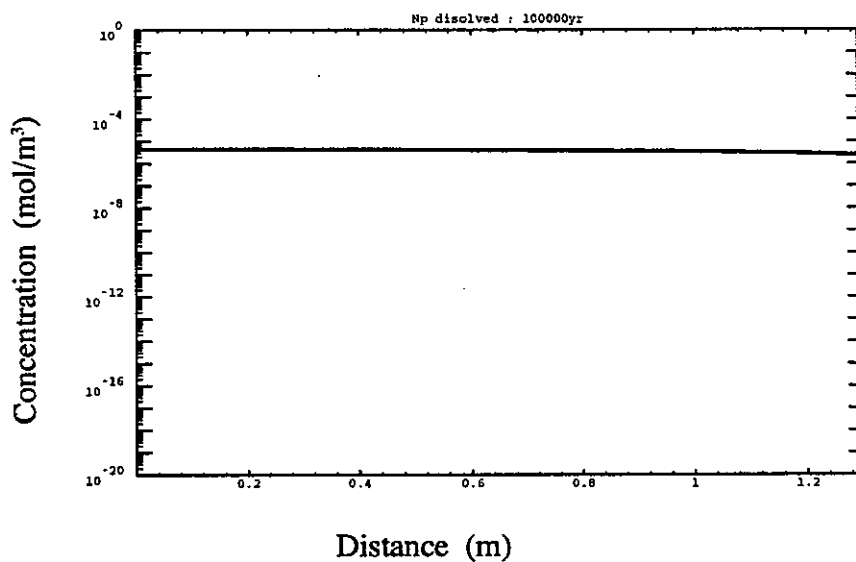


U-233

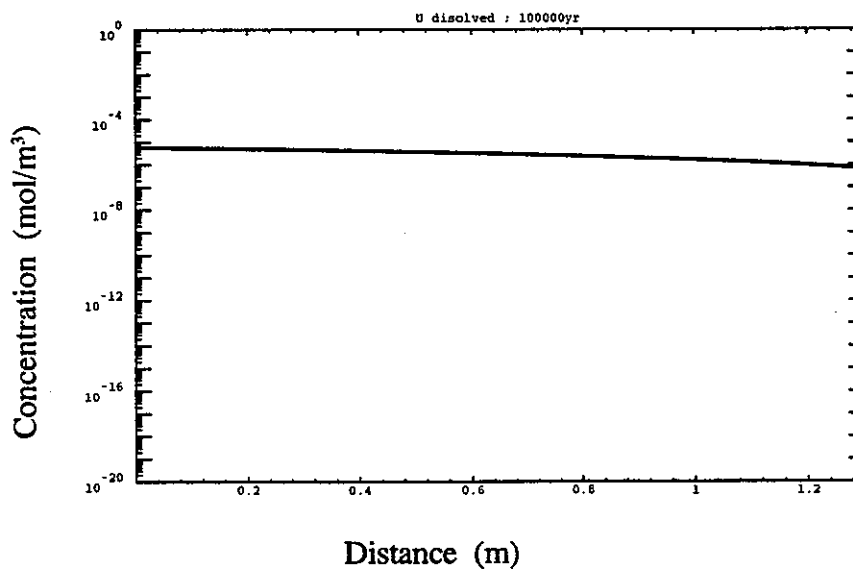
図 3.1.3-1 (42) 人工バリア中の核種濃度(ケース A-4, 準安定相, 10,000 年後)



Am-241

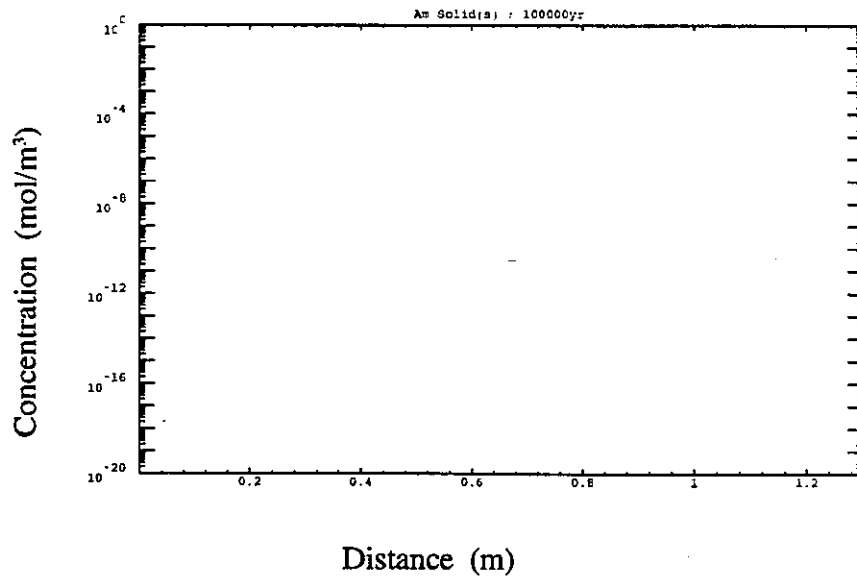


Np-237

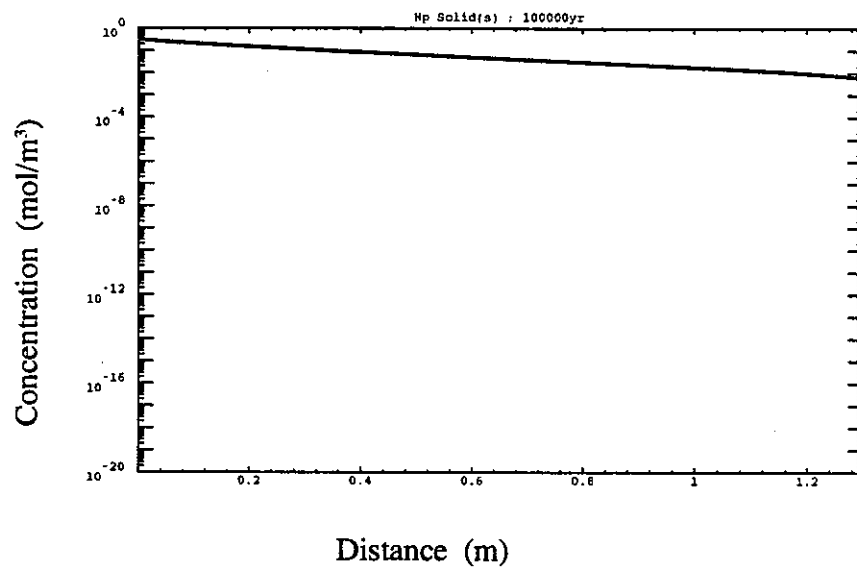


U-233

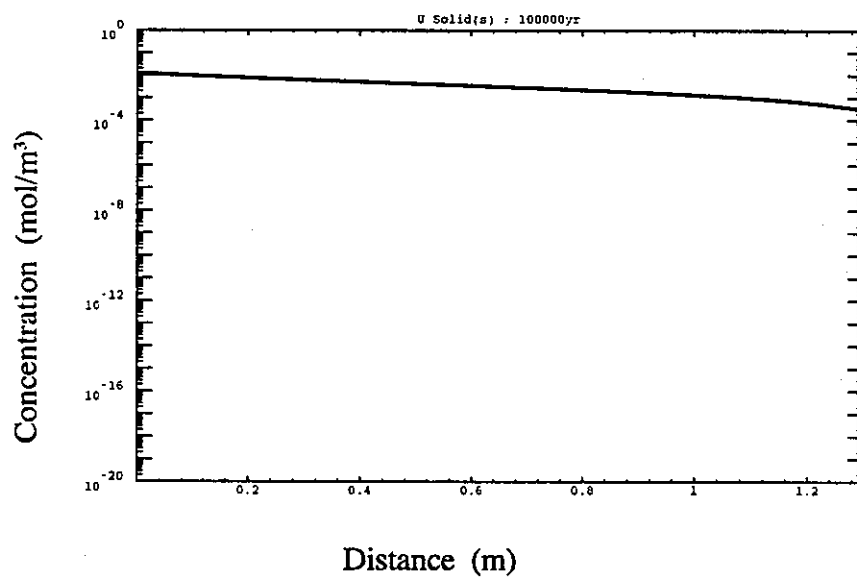
図 3.1.3-1 (43) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 溶存形, 10 万年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (44) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 安定相, 10 万年後)

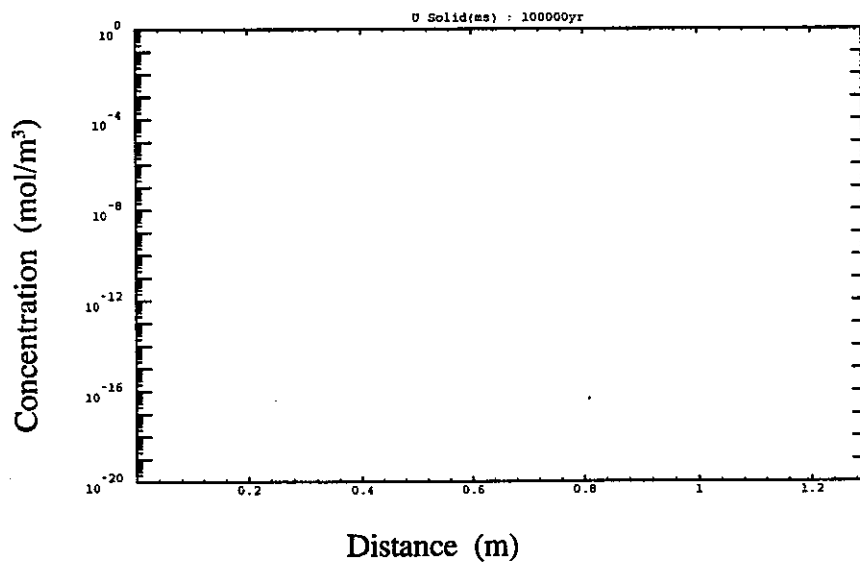
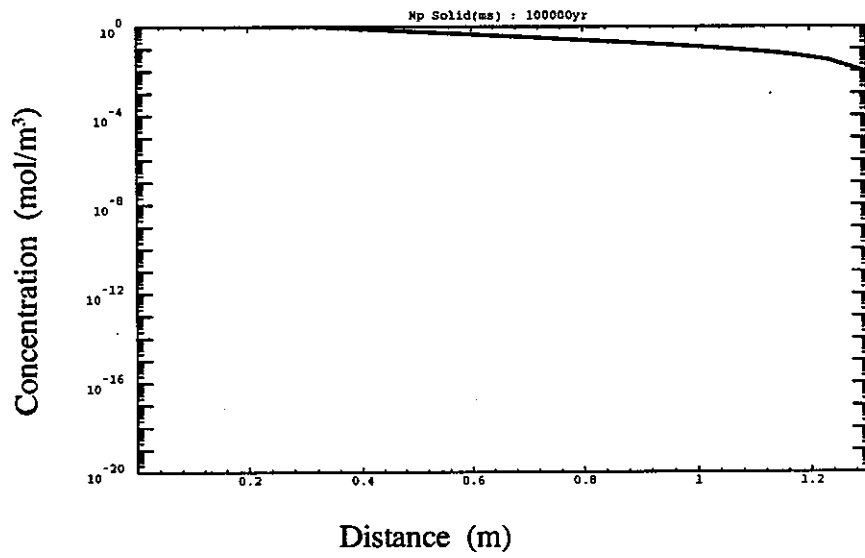
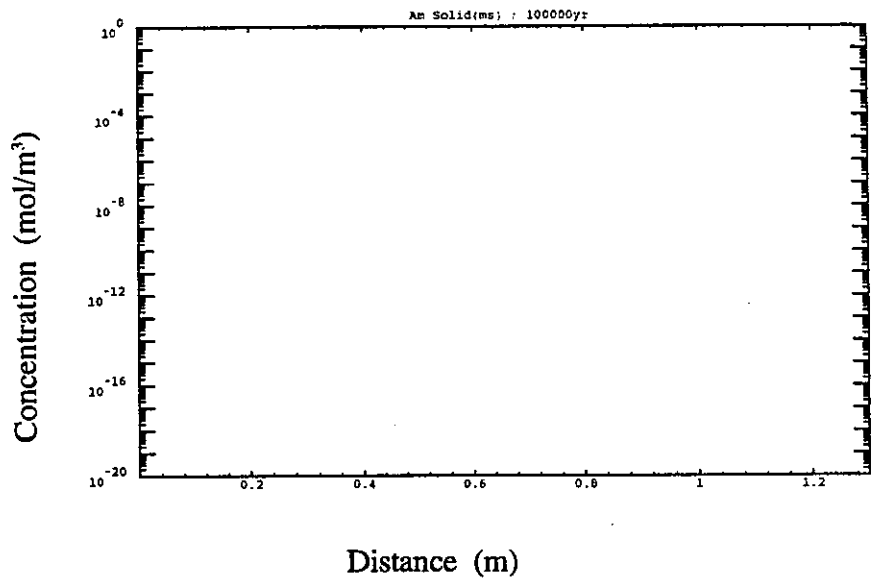
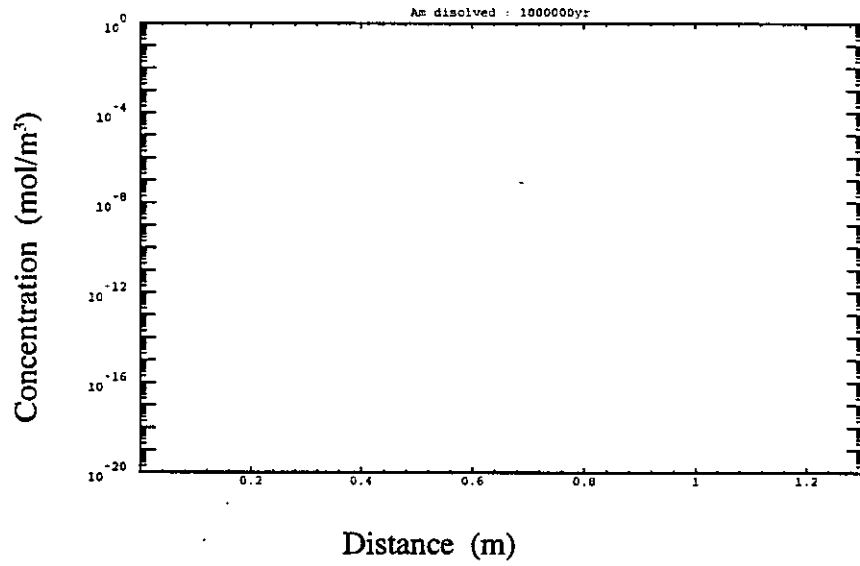
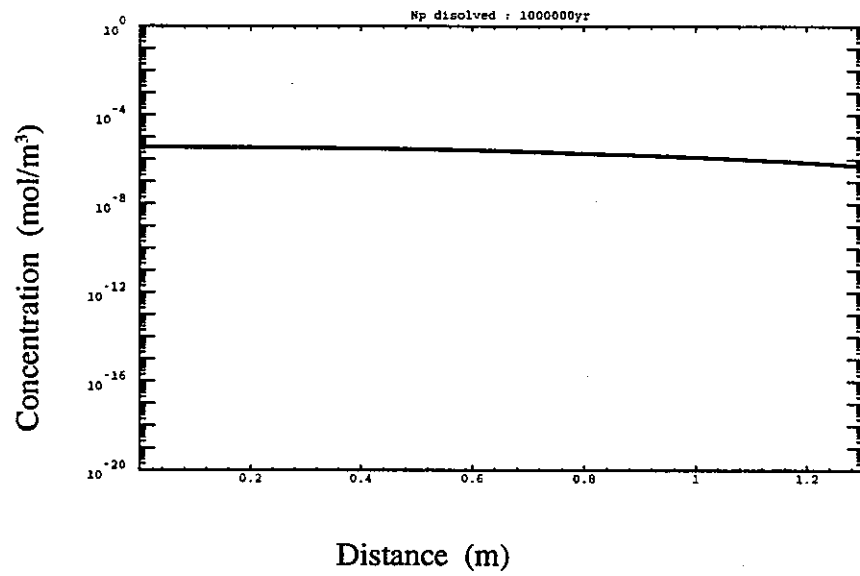


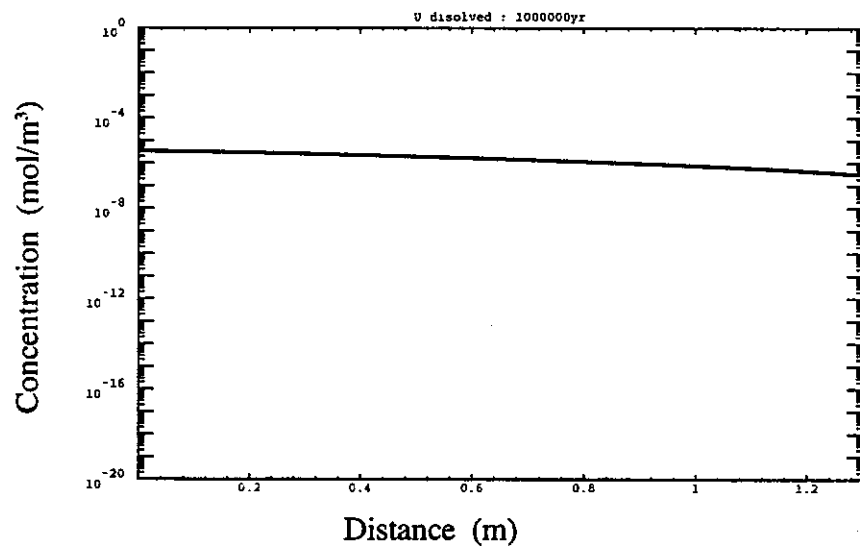
図 3.1.3-1 (45) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 準安定相, 10 万年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (46) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 溶存形, 100 万年後)



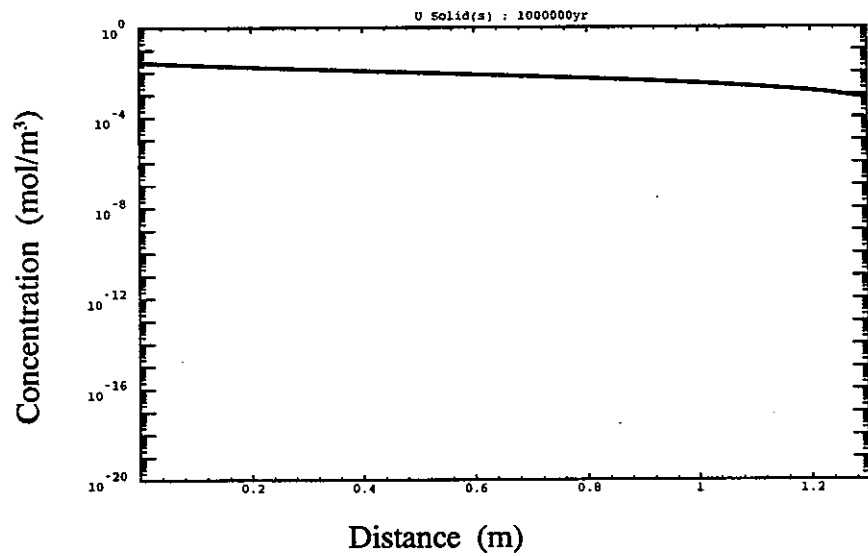
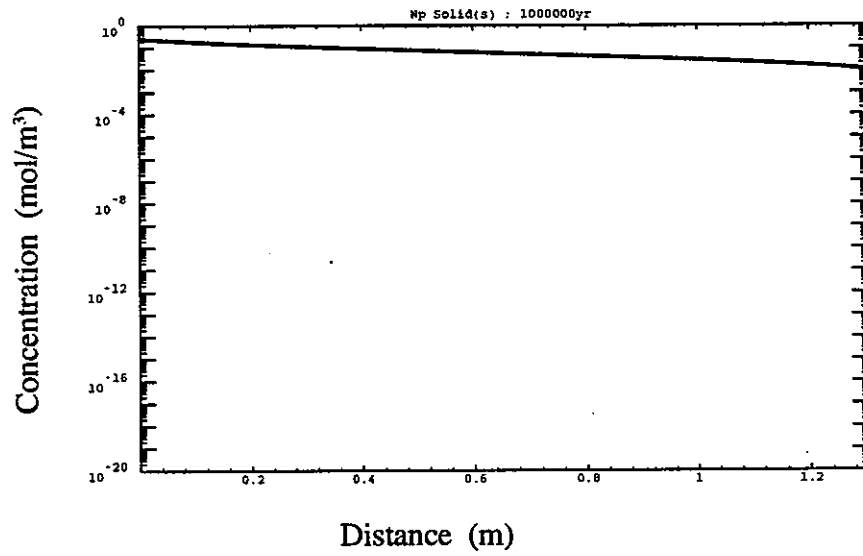
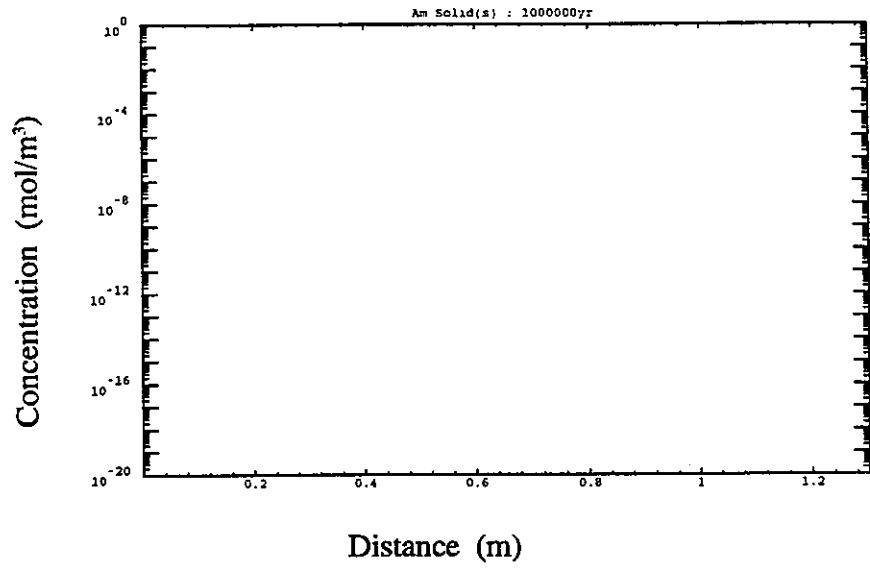
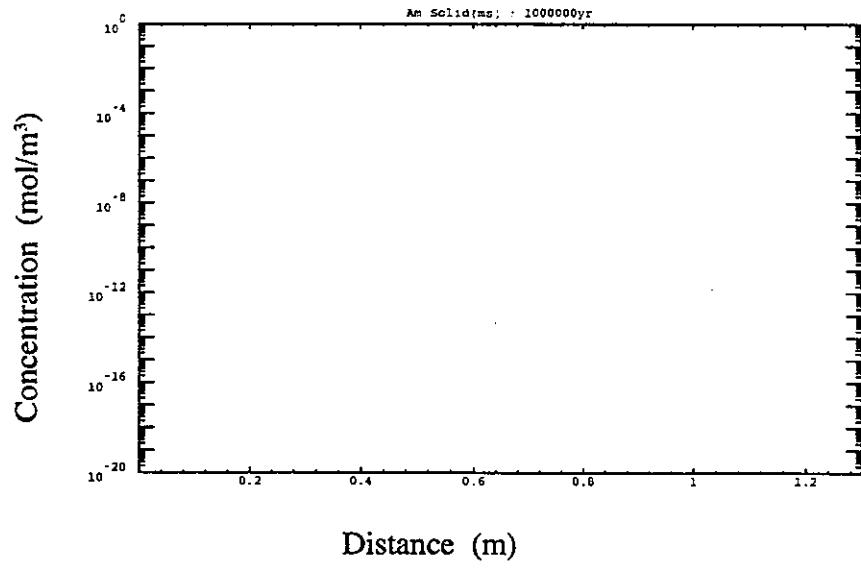
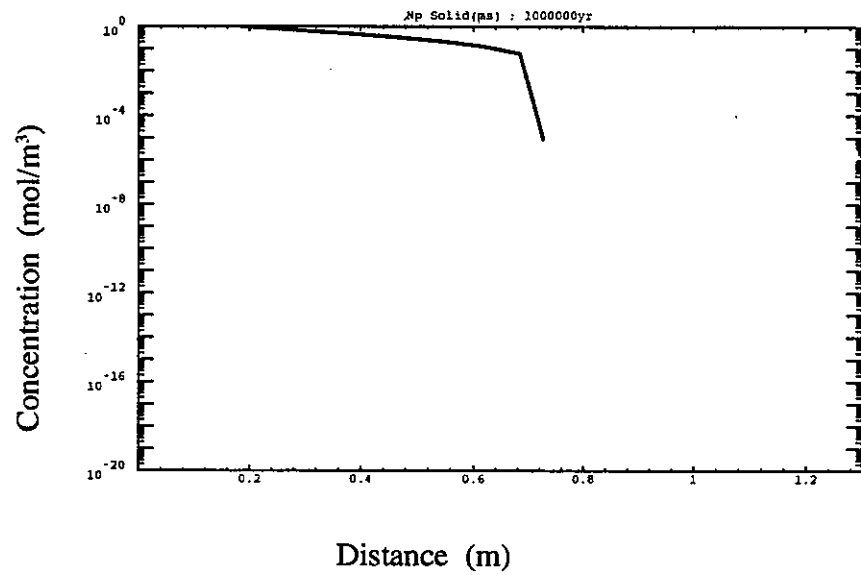


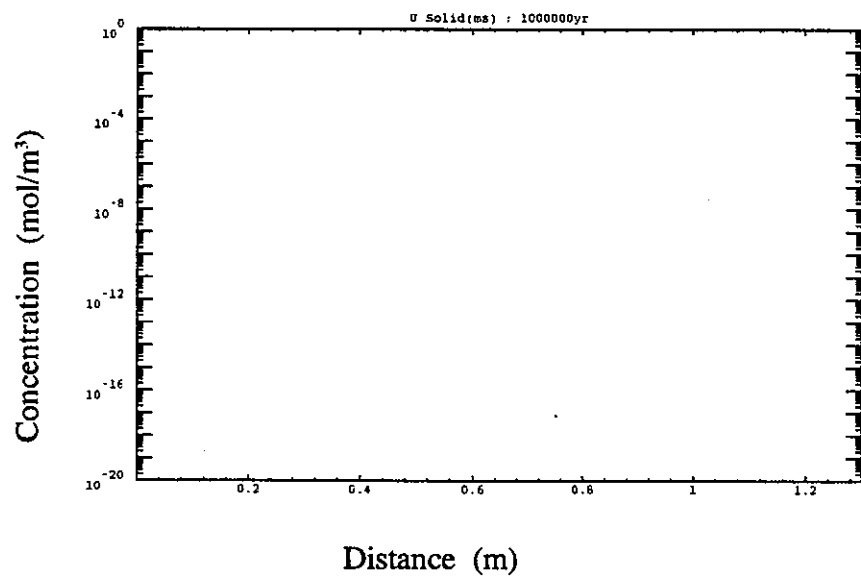
図 3. 1. 3-1 (47) 人工バリア中の核種濃度(ケース A-4, 安定相, 100 万年後)



Am-241



Np-237



U-233

図 3.1.3-1 (48) 人工バリア中の核種濃度 (ケース A-4, 準安定相, 100 万年後)

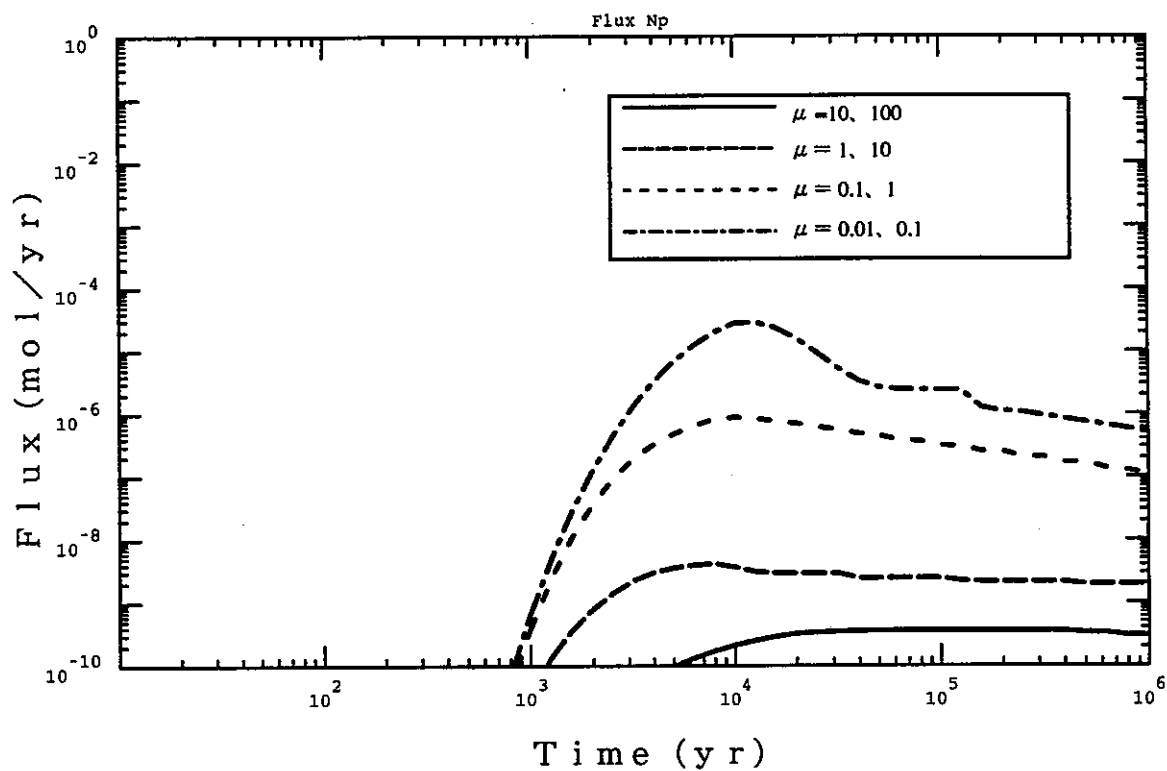


図 3.1.3-2 (1) 人工バリアからの核種放出率(Np)  
 アクチニド 基本ケース (A-1~4)

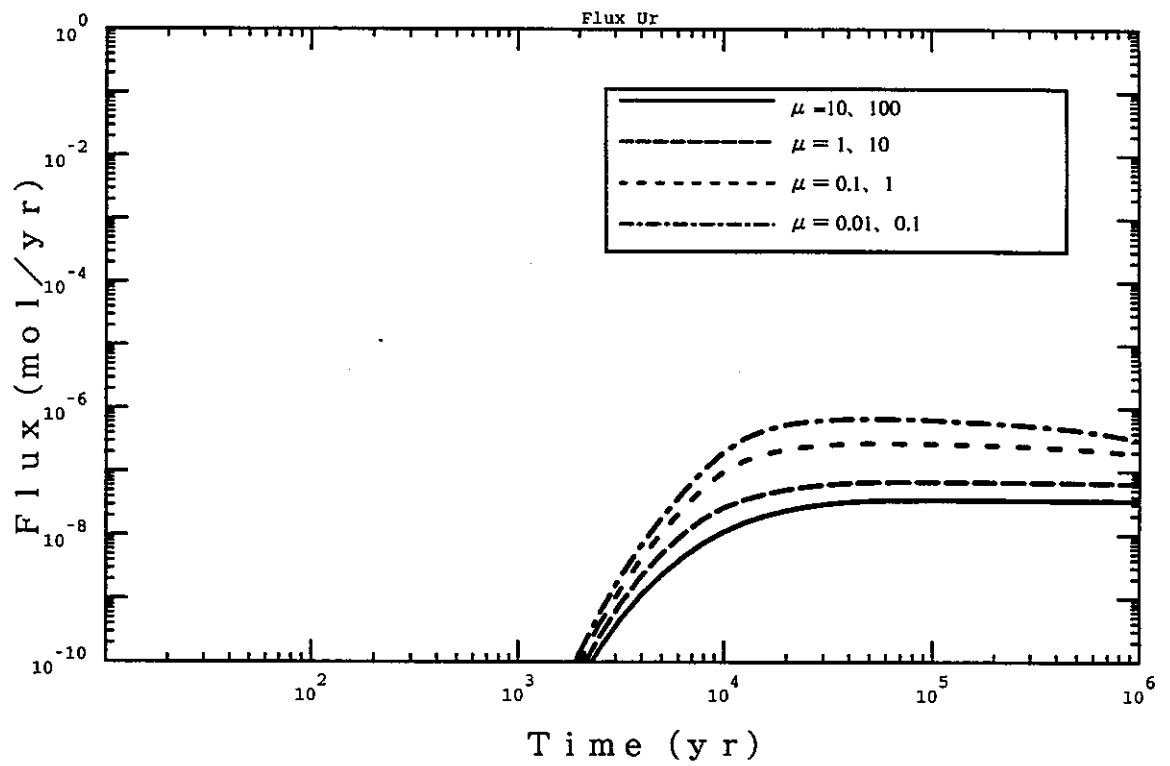


図 3.1.3-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 アクチニド 基本ケース (A-1~4)

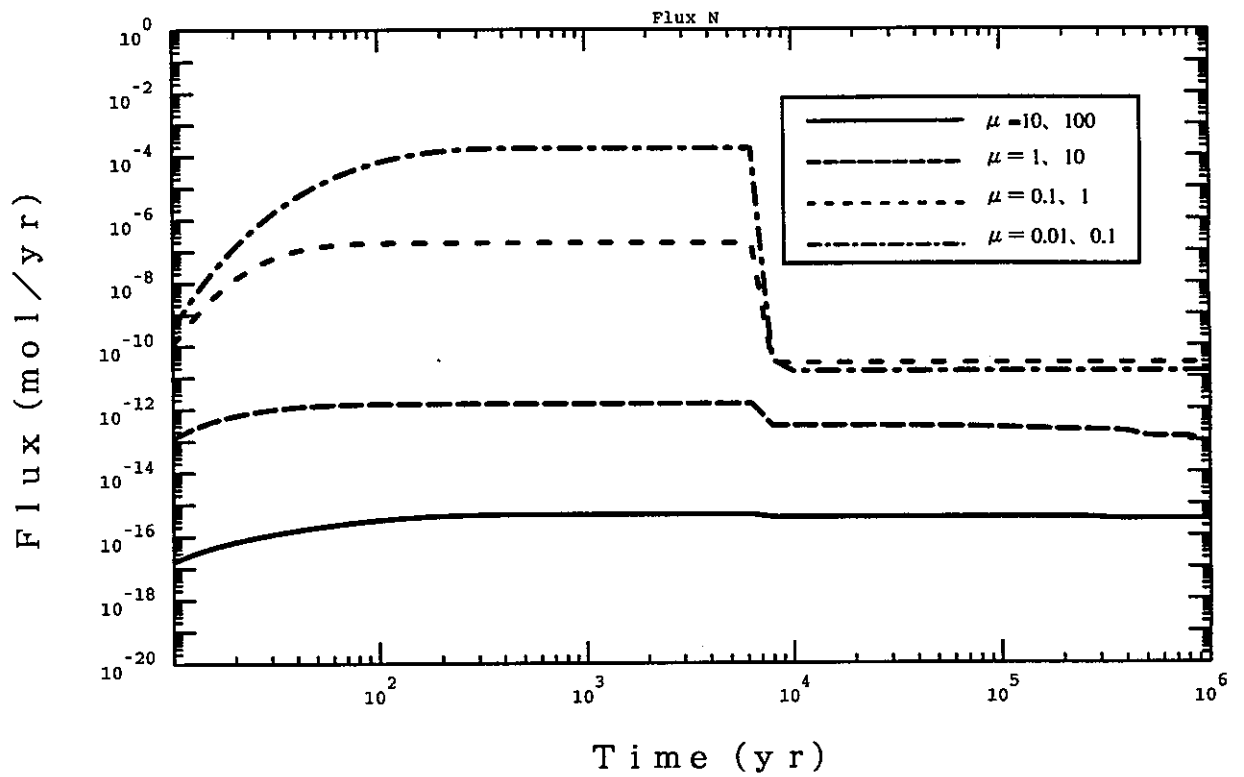


図 3.1.3-3 人工バリアからの核種放出率 (Tc)  
難溶解性核分裂生成物 基本ケース (C-1~4)

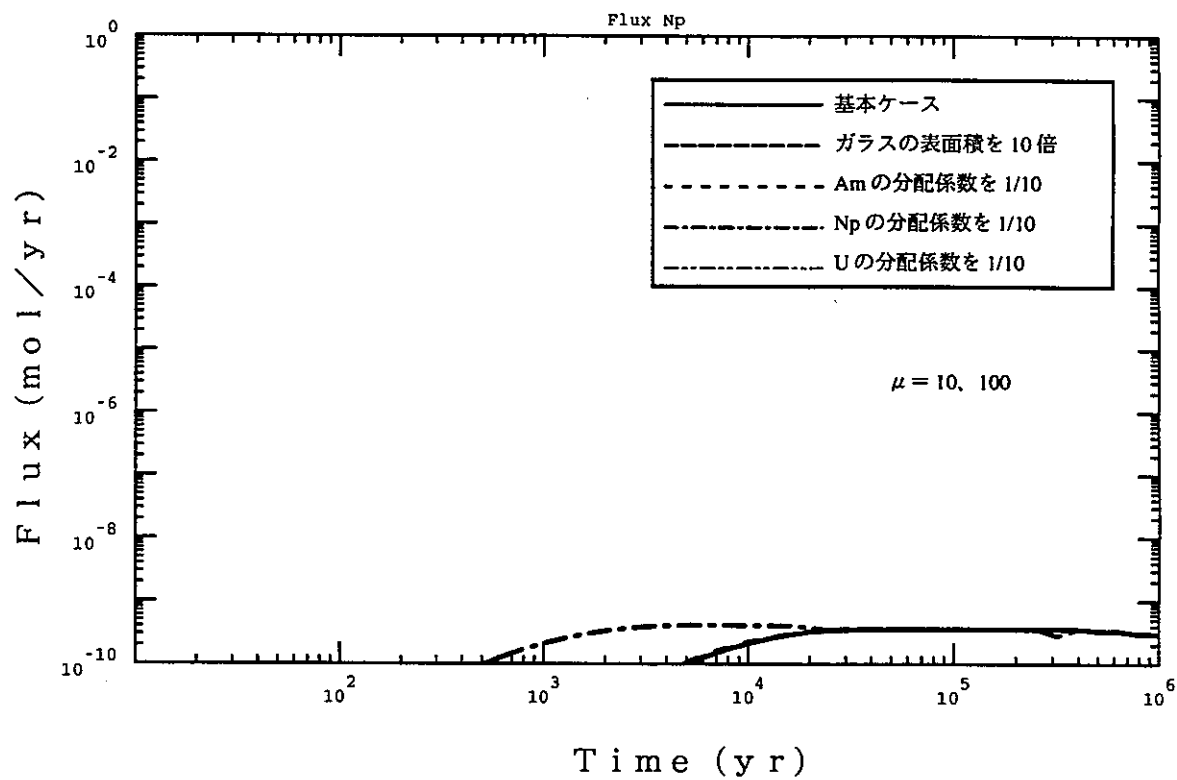


図 3.1.3-4 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 10, 100$  (B-1)

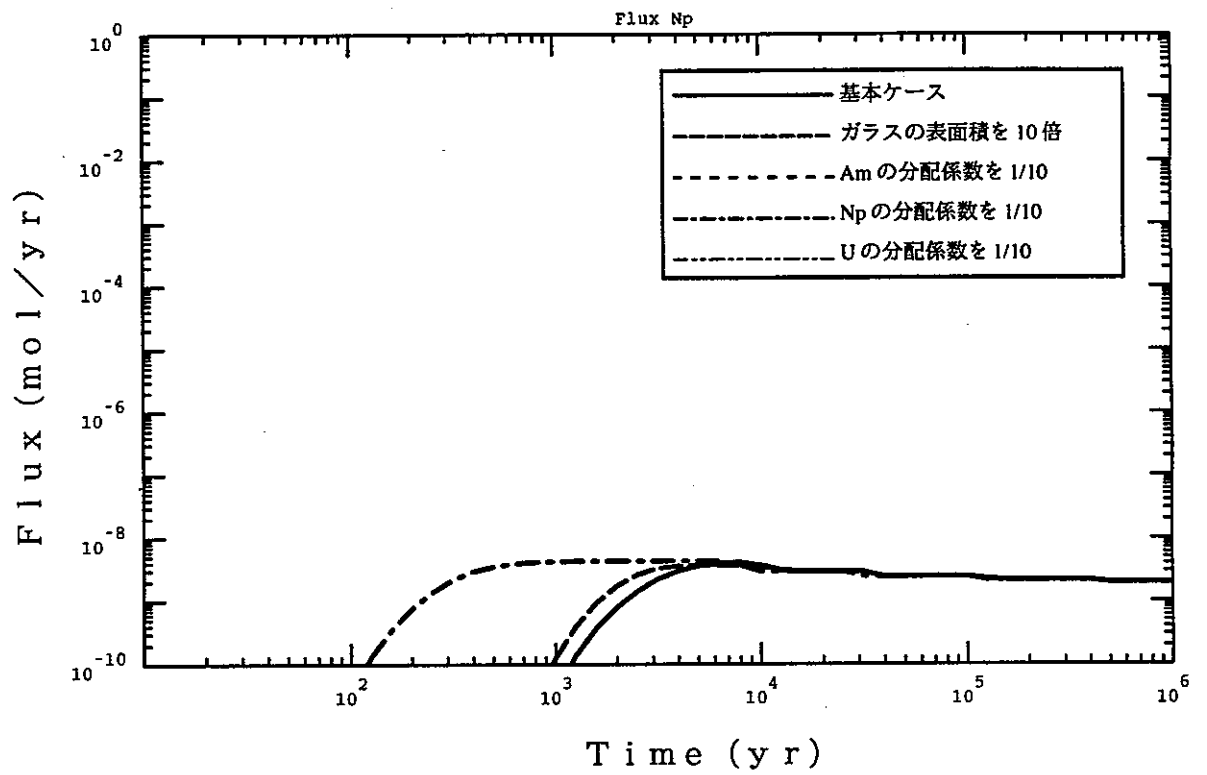


図 3.1.3-4 (2) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 1, 10$  (B-2)

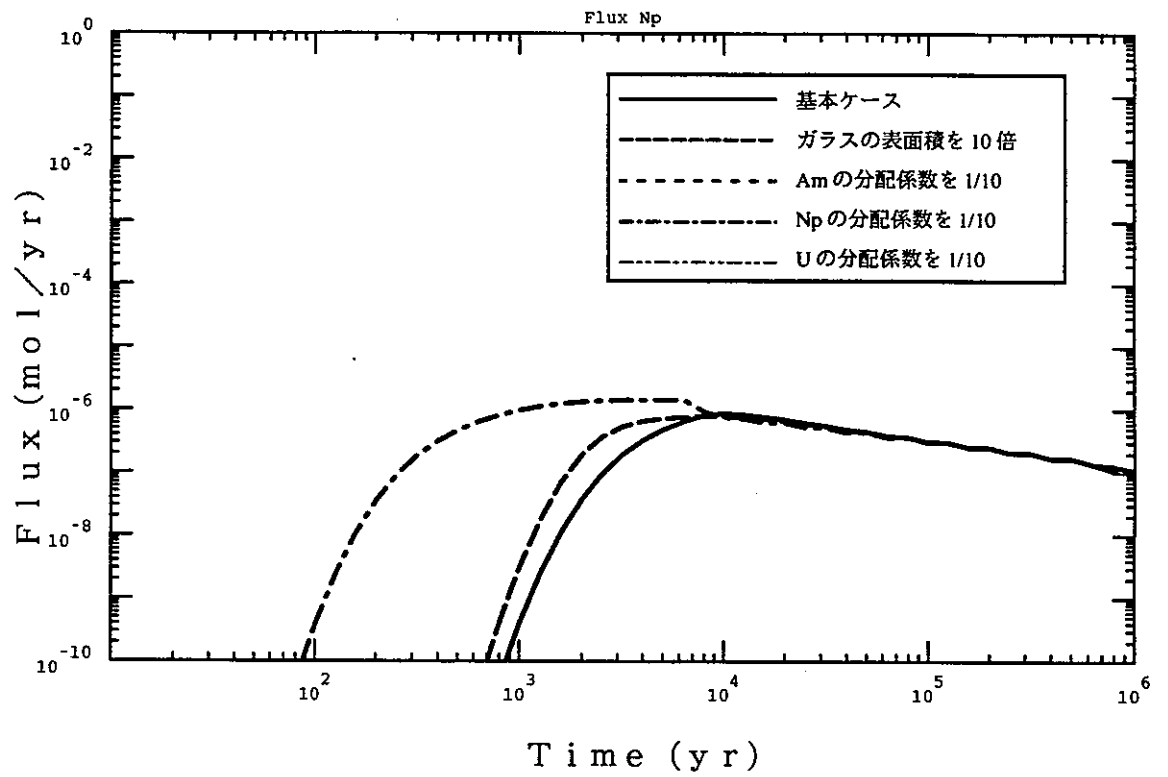


図 3.1.3-4 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 0.1, 1$  (B-3)



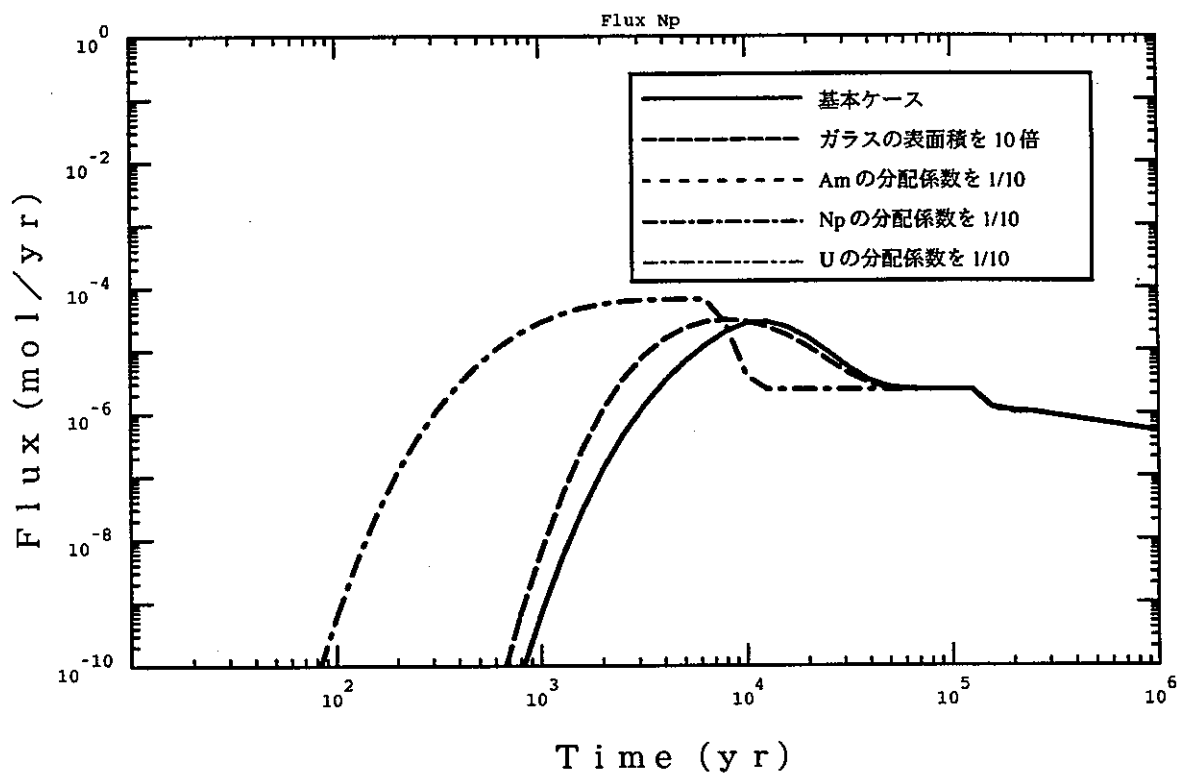


図 3.1.3-4 (4) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 0.01, 0.1$  (B-4)

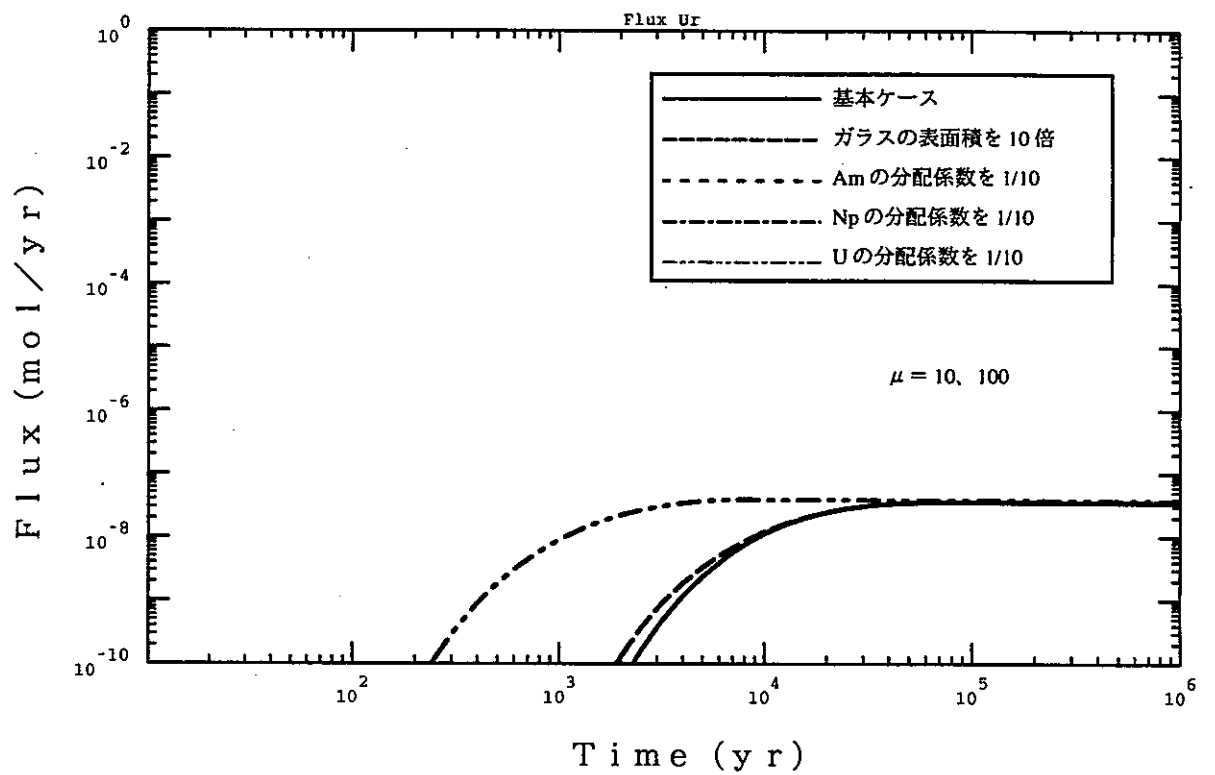


図 3.1.3-5 (1) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 10, 100$  (B-1)

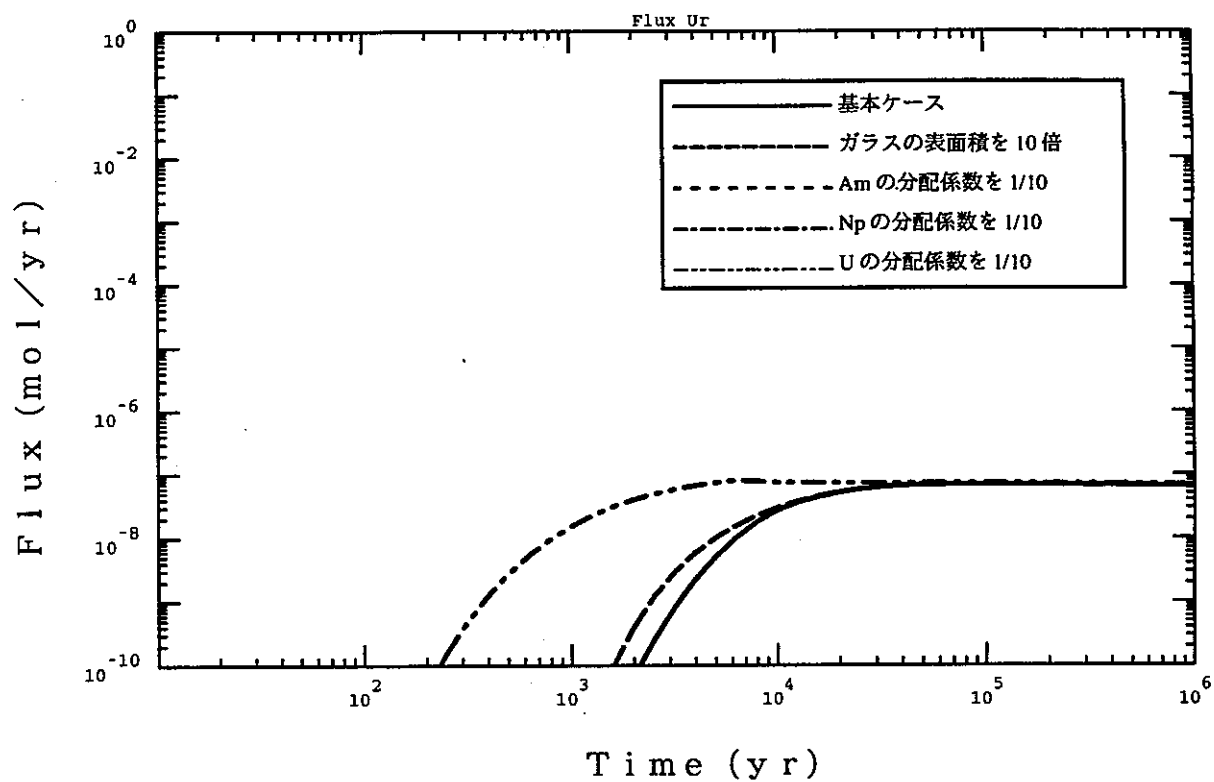


図 3.1.3-5 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 1, 10$  (B-2)

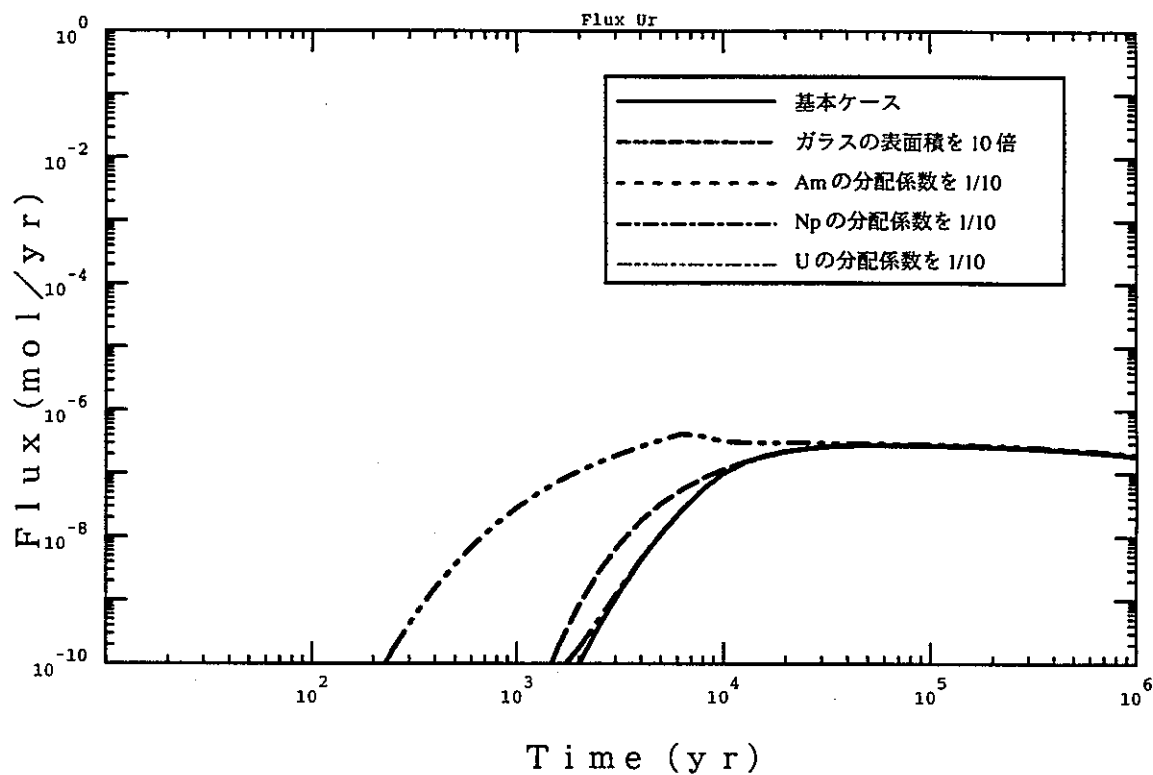


図 3.1.3-5 (3) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 0.1, 1$  (B-3)

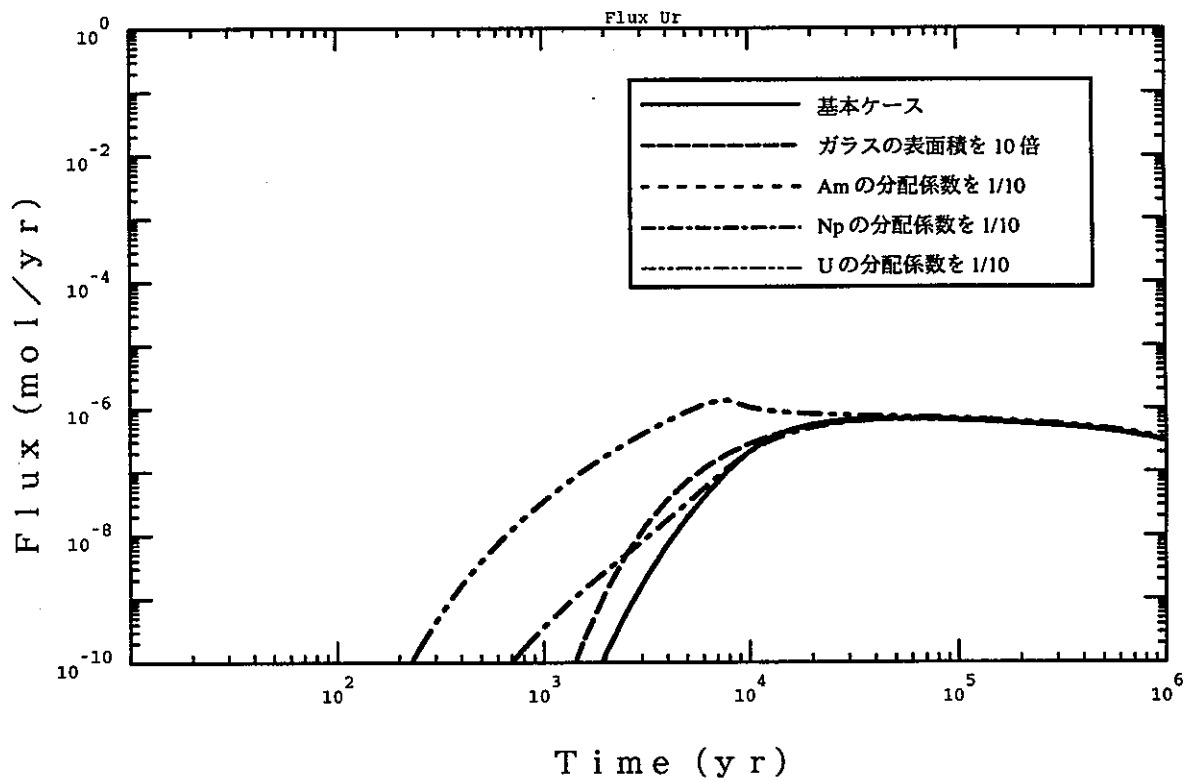


図 3.1.3-5 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)

アクチニド基本ケース感度解析  $\mu = 0.01, 0.1$  (B-4)

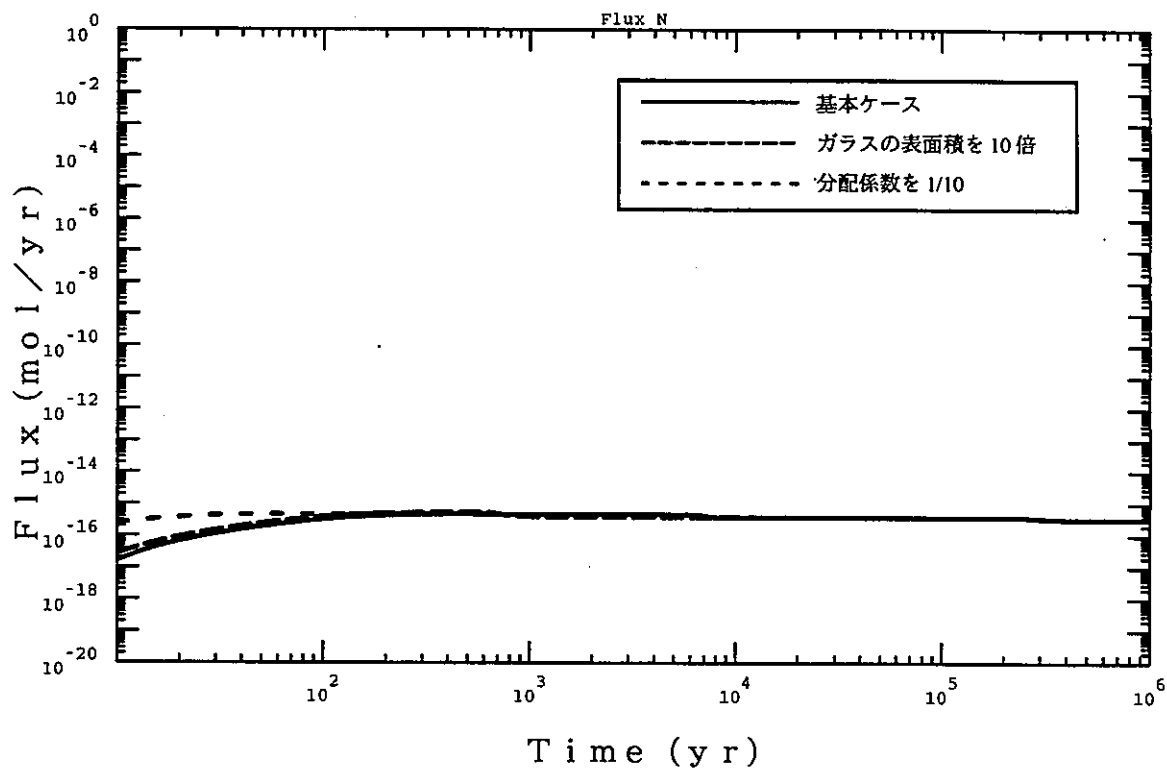


図 3.1.3-6 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Tc)  
難溶解性核分裂生成物 感度解析  $\mu = 10, 100$  (D-1)

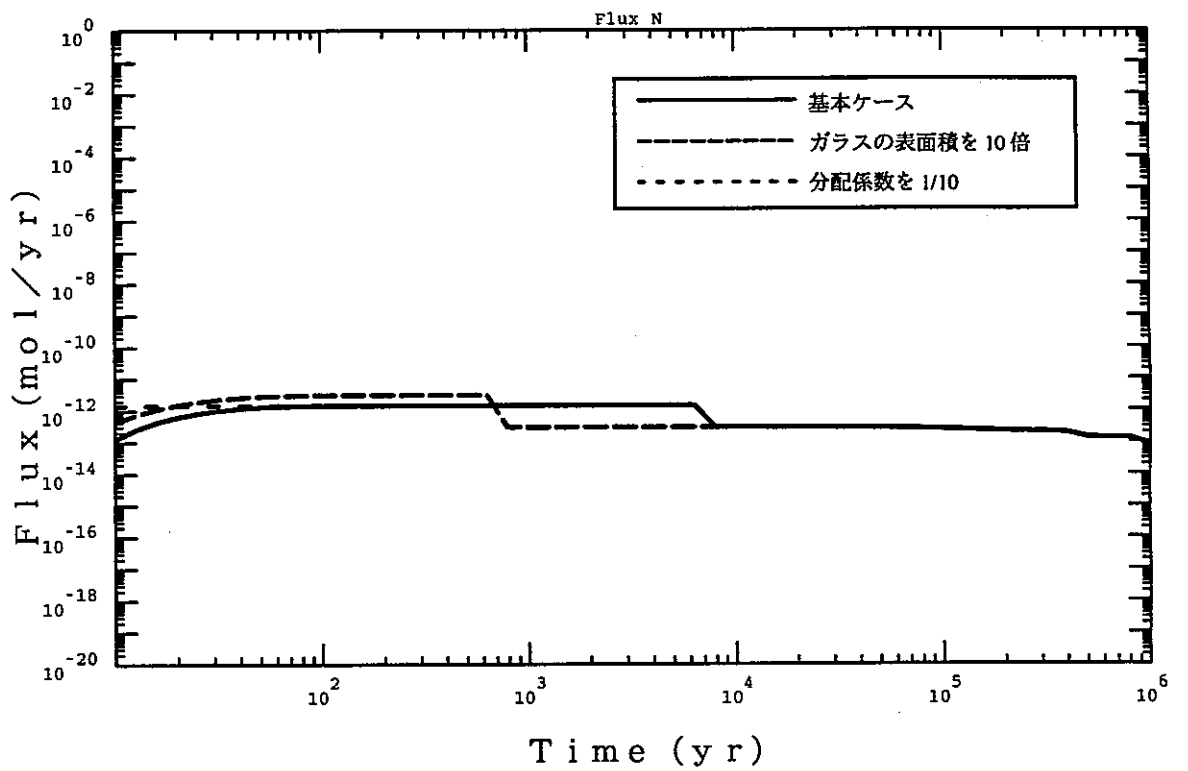


図 3.1.3-6 (2) 人工バリアからの核種放出率 (Tc)  
難溶解性核分裂生成物 感度解析  $\mu = 1, 10$  (D-2)

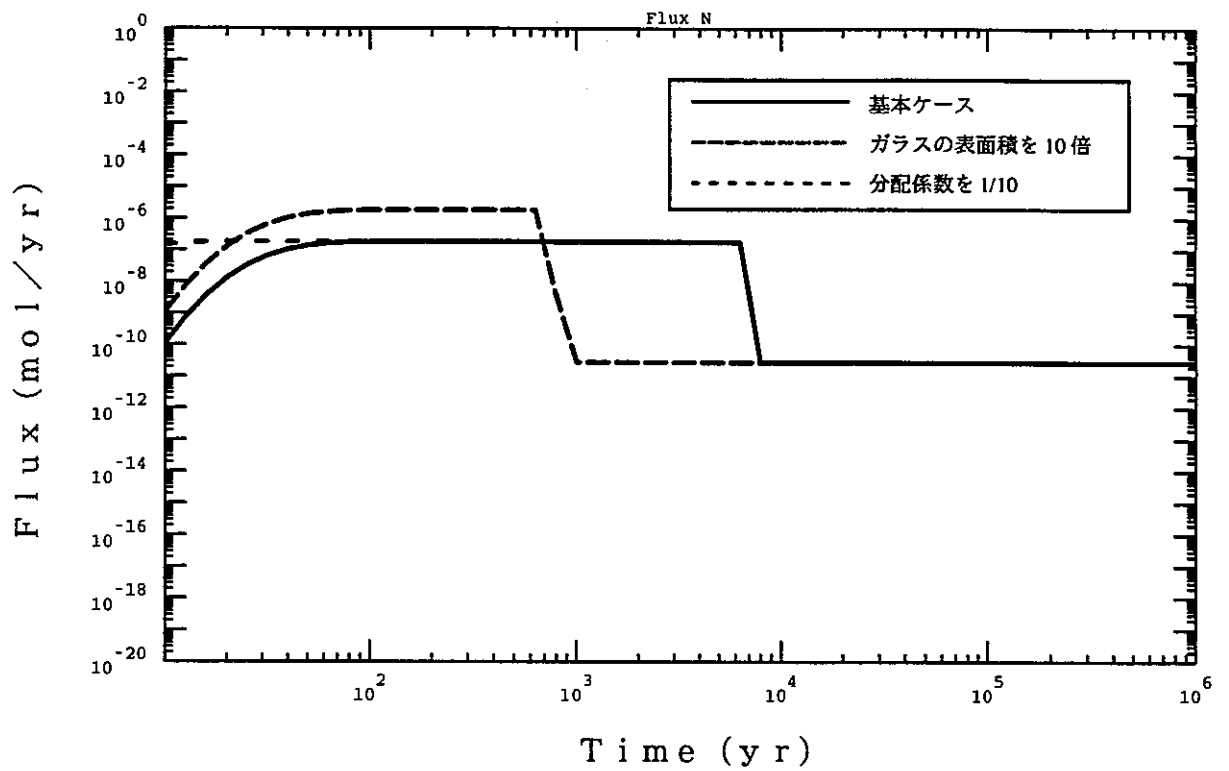


図 3.1.3-6 (3) 人工バリアからの核種放出率(Tc)

難溶解性核分裂生成物 感度解析  $\mu = 0.1, 1$  (D-3)



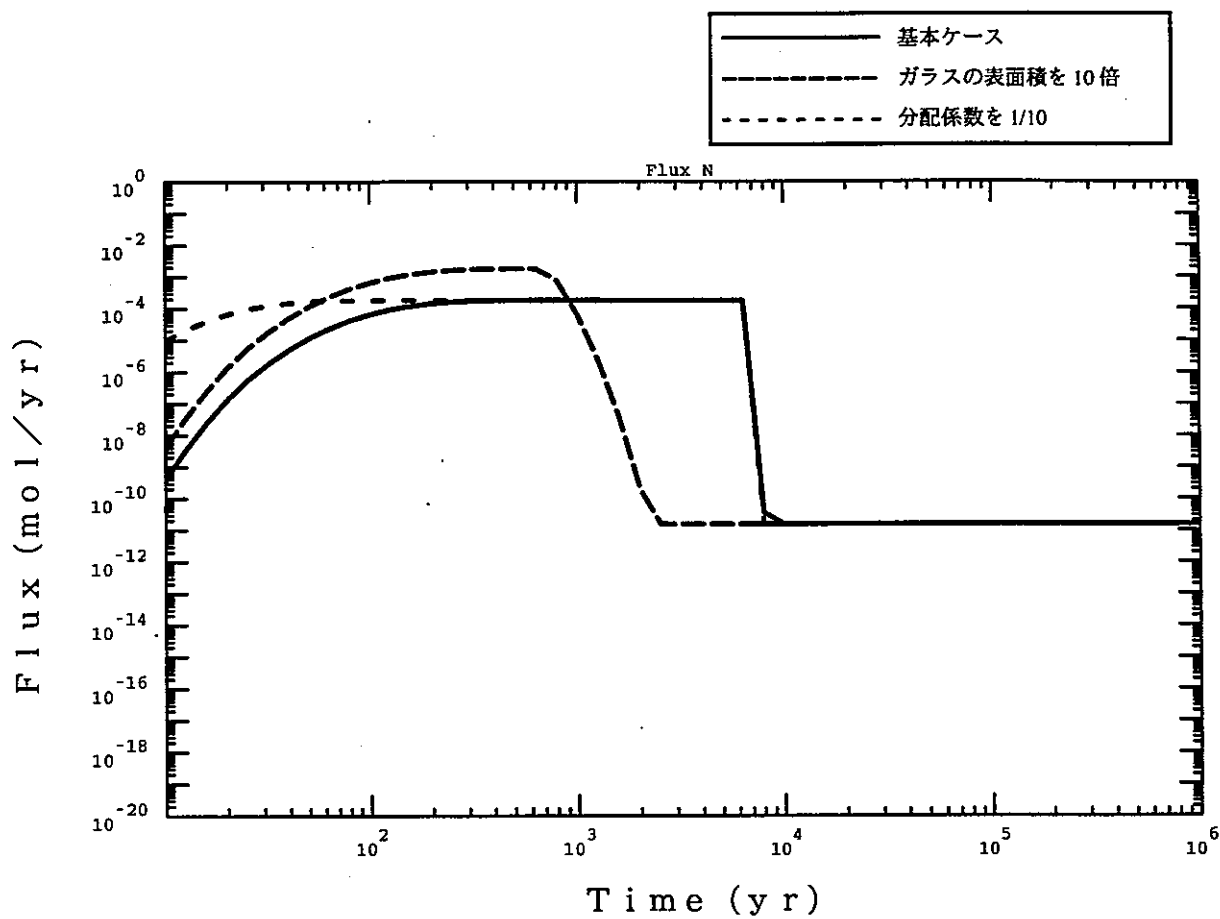
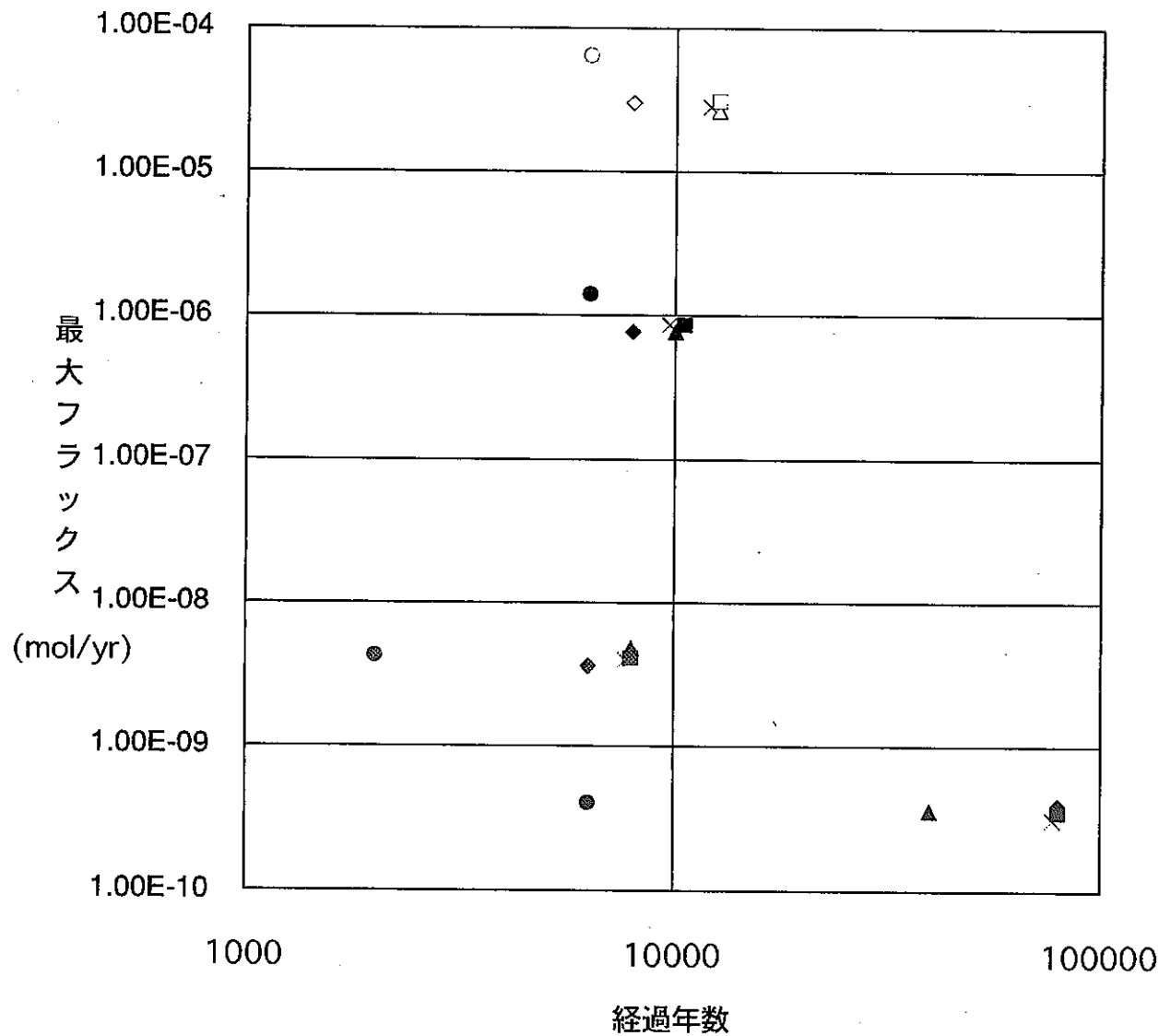
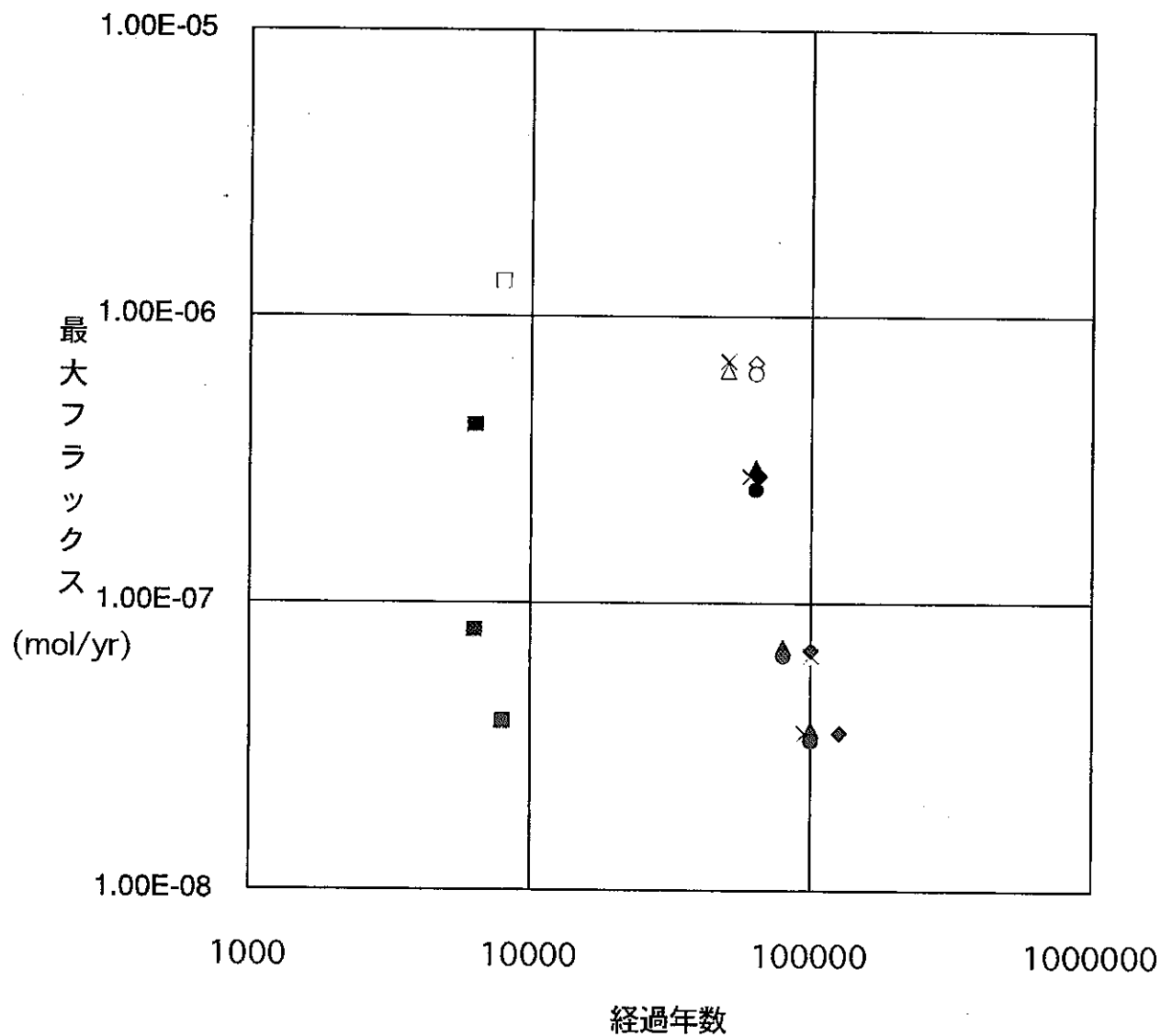


図 3.1.3-6 (4) 人工バリアからの核種放出率 (Tc)  
 難溶解性核分裂生成物 感度解析  $\mu = 0.01, 0.1$  (D-4)



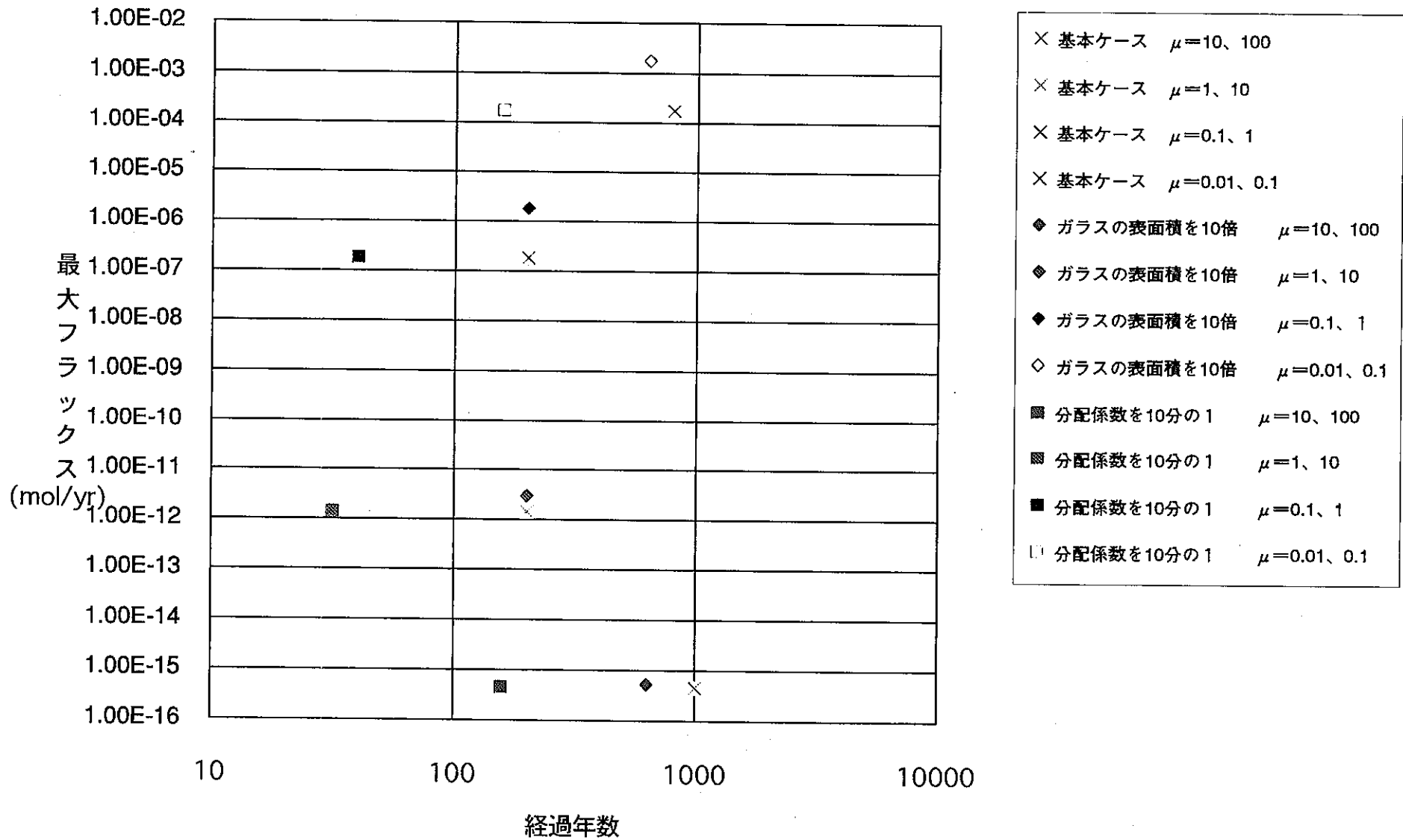
- × 基本ケース  $\mu=10、100$
- × 基本ケース  $\mu=1、10$
- × 基本ケース  $\mu=0.1、1$
- × 基本ケース  $\mu=0.01、0.1$
- ◇ ガラスの表面積を10倍  $\mu=10、100$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=10、100$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=10、100$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=10、100$
- ◇ ガラスの表面積を10倍  $\mu=1、10$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=1、10$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=1、10$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=1、10$
- ◇ ガラスの表面積を10倍  $\mu=0.1、1$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=0.1、1$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=0.1、1$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=0.1、1$
- ◇ ガラスの表面積を10倍  $\mu=0.01、0.1$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=0.01、0.1$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=0.01、0.1$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=0.01、0.1$

図B.1.3-7 基本ケースについての感度解析結果のまとめ (Np-237)



- × 基本ケース  $\mu=10、100$
- × 基本ケース  $\mu=1、10$
- × 基本ケース  $\mu=0.1、1$
- × 基本ケース  $\mu=0.01、0.1$
- ◆ ガラスの表面積を10倍  $\mu=10、100$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=10、100$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=10、100$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=10、100$
- ◆ ガラスの表面積を10倍  $\mu=1、10$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=1、10$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=1、10$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=1、10$
- ◆ ガラスの表面積を10倍  $\mu=0.1、1$
- ▲ Amの分配係数を10分の1  $\mu=0.1、1$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=0.1、1$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=0.1、1$
- ◇ ガラスの表面積を10倍  $\mu=0.01、0.1$
- △ Amの分配係数を10分の1  $\mu=0.01、0.1$
- Npの分配係数を10分の1  $\mu=0.01、0.1$
- Uの分配係数を10分の1  $\mu=0.01、0.1$

図3.1.3-8 基本ケースについての感度解析結果のまとめ (U-233)



図B.1.3-9 基本ケースについての感度解析結果のまとめ (Tc-99)

### 3.2 核種移行挙動に関する代替ケースについての解析

3.1に述べた核種の溶解・沈殿についての速度論的な効果を取り込んだ基本ケースに対して、ここでは、

- (1) コロイド生成・移行
- (2) 鉄・ケイ素共沈
- (3) 結晶化

をそれぞれ考慮した代替ケースにつき、対応するダミー変数と反応速度項の具体形を定義することによってモデル化を行い、計算を実施した。内容、及び結果について以下にまとめる。

#### 3.2.1 コロイド生成・移行

##### 3.2.1.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

1.2.3に述べた様に、ここではワイマルンの法則に従い比較的過飽和の程度が高い状態で速やかに生じる小粒径のコロイドに着目してモデル化を行うこととする。モデルとしては、液相濃度が一定程度過飽和となった時、これ以上の濃度上昇分は全て瞬時のうちに当該コロイドに変化するものと仮定し、このコロイド粒子の分子拡散と線形・瞬時・可逆な吸着、さらに液相濃度がコロイド生成のための下限値を下回った場合の溶存形への瞬時の解離とを考慮したものを基本とする。このモデルにおいては、ダミー変数は次の様に定義される。

$$\alpha$$
$$\alpha = \frac{D_{\text{dissolv}}}{Rf}, \quad (0 \leq C < Rf c_{\text{colloid}}^*)$$
$$= \frac{D_{\text{dissolv}} c^* + D_{\text{colloid}} \frac{C - Rf c^*}{1 + Tr}}{C}, \quad (Rf c_{\text{colloid}}^* \leq C). \quad (5)$$

但し、

$c^*_{\text{colloid}}$ ; コロイド生成のための液相濃度の下限

$D_{\text{colloid}}$ ; コロイドの拡散係数

$\text{Tr}$ ; 吸着されたコロイドと移行可能なコロイドとの比

$\beta$

$$\begin{aligned}\beta &= \frac{1}{\text{Rf}}, \quad (0 \leq C < \text{Rf } c^*_{\text{colloid}}) \\ &= \frac{c^*_{\text{colloid}}}{C}, \quad (\text{Rf } c^*_{\text{colloid}} \leq C).\end{aligned}\tag{6}$$

$\delta$

$$\begin{aligned}\delta &= \frac{1}{\text{Rf}}, \quad (0 \leq C < \text{Rf } c^*_{\text{colloid}}) \\ &= \frac{c^*_{\text{colloid}} + \frac{C - \text{Rf } c^*_{\text{colloid}}}{1 + \text{Tr}}}{C}, \quad (\text{Rf } c^*_{\text{colloid}} \leq C)\end{aligned}\tag{7}$$

また、反応速度項についての代数表現は基本ケースにおける設定と全く同じであるが、表現の中に含まれる  $\beta$  の内訳は、上記の様に基本ケースと異なることに注意を要する。次に、コロイド粒子の凝集により粒径が増大し、ついにはコロイドとして浮遊することができず準安定な沈殿を不可逆に生成するという効果を考えた代替的なモデルを定義する。この場合には、ダミー変数の定義は上と全く同じであるが、反応速度項を基本シナリオから変化させることが必要となる。すなわち、液相から準安定相への反応項として、基本シナリオに含まれている通常の溶解沈殿項  $R$  に加えて、コロイド凝集による不可逆な沈殿生成に対応した項  $R_{\text{aggregation}}$  を以下の様に定義する。

$$R_{\text{aggregation}} = \mu_{\text{aggregation}} (C - \text{Rf } c^*_{\text{colloid}}) H[C - \text{Rf } c^*_{\text{colloid}}].\tag{8}$$

$\mu_{\text{aggregation}}$  ; コロイド凝集による沈殿生成の時定数

### 3.2.1.2 解析条件

コロイドについての基本的なモデル（コロイド凝集を考慮していない解析物）ケースを用いて行った解析ケースの条件設定を表3.2.1.2-1にまとめる。ここでは、アクチニドの崩壊連鎖(Am-241 系列) と難溶解性核分裂生成物(Tc-99) のそれぞれについて、基本ケースにおける溶解沈殿反応速度が(10,100) 及び(0.1,1) (ケースA -1, A -3) を選択し、これに加えてコロイド生成の下限濃度( $c^*_{\text{colloid}}$ )を準安定相の溶解度の2 あるいは10 倍とし、吸着されたコロイドと移行可能なコロイドの比( $Tr$ ) を溶存形の核種の分配係数を変化させ遅延係数の1/10 あるいは1/100 になるようにして合計各8 ケースの解析を行った。

また、コロイド凝集については、上記のうちケースF-2#2 に対して、 $\mu_{\text{aggregation}}=0.1$  及び1 という二つのケースを想定し、これについても追加的に解析を実施した。

表 3.2.1.2-1 コロイド生成・移行についての計算ケース設定

アクチニド崩壊連鎖

ケース名	変動パラメータ値
F-1 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (10, 100)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/100)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/100)$
F-2 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.1, 1)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/100)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/100)$

難溶解性核分裂生成物 (Tc-99)

ケース名	変動パラメータ値
G-1 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (10, 100)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/100)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/100)$
G-2 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms}) = (0.1, 1)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (2c^*_{ms}, Rf/100)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/10)$ $(c^*_{colloid}, Tr) = (10c^*_{ms}, Rf/100)$



### 3.2.1.3 結果

3.2.1.2に述べたケースのうち、F-2#2におけるNpの溶存形、移行可能なコロイド、安定相、準安定相の104年後の人工バリア中濃度プロファイルを図3.2.1.3-1にまとめる。図から明らかな様に、コロイドは人工バリアの全域に亘って存在しており、このため、溶存形の核種濃度は全域でコロイド生成の下限濃度一定であり、また、安定相及び準安定相のいずれもゆるみ域に到るまで形成されている。なお、Am-241、及びU-233についてはいずれのケースにおいても液相濃度がコロイド生成のための下限濃度に達せず、従ってコロイドは形成されなかった。

アクチニドについて、人工バリアからの核種放出率の経時変化の計算結果を図3.2.1.3-2に示す。溶解・沈澱が速いF-1の諸ケースにおいては、液相濃度が達し得る過飽和の程度も、また、過飽和の生じる領域も限定されているためにコロイドの生成量自体が少なく、いずれも基本ケースからの差異は有意ではない。しかし、溶解・沈澱反応が遅いF-2のケースでは、コロイド生成の下限濃度に対する過剰分が増大するためにコロイド濃度も上昇し、基本ケースよりも最大3桁程度高いNpの最大核種放出率が算出されている(Uについては1桁以内)。また、コロイド生成の下限濃度については、準安定相濃度の10倍としたケースよりも2倍としたケースの方が核種放出率は大きく、このことは、より低い過飽和の程度から移行可能なコロイドが生じる場合の方がコロイドの総量も大きく、結果への影響が大きいことを示している。また、コロイドに対する線形・可逆の吸着効果については、前出の二つのTrの値(Rf/10、及びRf/100)では最大核種放出率が約1桁異なっている。なお、コロイド生成・移行の影響が最も大きいF-2#2において、3段階のプラトーが現れているが、これらは大きい順に、1)ゆるみ域中にNpのコロイドが存在する条件での定常状態、2)ゆるみ域中に準安定相の沈澱が存在する状況での定常状態、及び3)ゆるみ域中には安定相の沈澱のみが存在する条件での定常状態、にそれぞれ対応するものと考えられる。

難溶解性核分裂生成物(Tc-99)についての解析結果を、図3.2.1.3-3に示す。Tc-99については、基本ケースにおいても述べた様に、インベントリが比較的大きいのに対して溶解度は小さく、潜在的に過飽和となる程度が大きい条件となっている。従って、コロイド生成・移行を考えたいずれのケースにおいても十分な量のコロイドが生成されるために、最大核種放出率は $10^{-3}$  mol/yr/waste と、反応速度の大きい基本ケース(C-1)を13桁程度、反応速度の遅い基本ケース(C-3)をも4桁程度上回るものとなっている。また、ここでは全

てのコロイドケースにおいて、コロイドが人工バリア全域に存在する条件での定常状態が達成されており、 $Tr$  や  $c^*_{colloid}$  といったパラメータの最大放出率への感度は無視し得る程小さい物となっている。

以上、コロイドの線形・過逆な吸着を考えたコロイド基本モデルによる感度解析の結果を図3.2.1.3-4にまとめる。

上述したモデルに対して、代替的に、コロイド凝集による不可逆な沈澱形成の効果を取り入れたモデルで、上記F-2#2 についての追加解析を行った結果が、図3.2.1.3-5である。ここでは、 $\mu_{aggregation}$  を0.1及び1.0としたいずれのケースにおいても、核種放出率は基本ケースと同程度に抑えられている。つまり、準安定相の形成と同様のタイムスケールでコロイド凝集による沈澱が生じ、これが不可逆なコロイド固定化のメカニズムとして期待できれば、コロイド問題の影響は無視し得る物となる可能性があることになる。

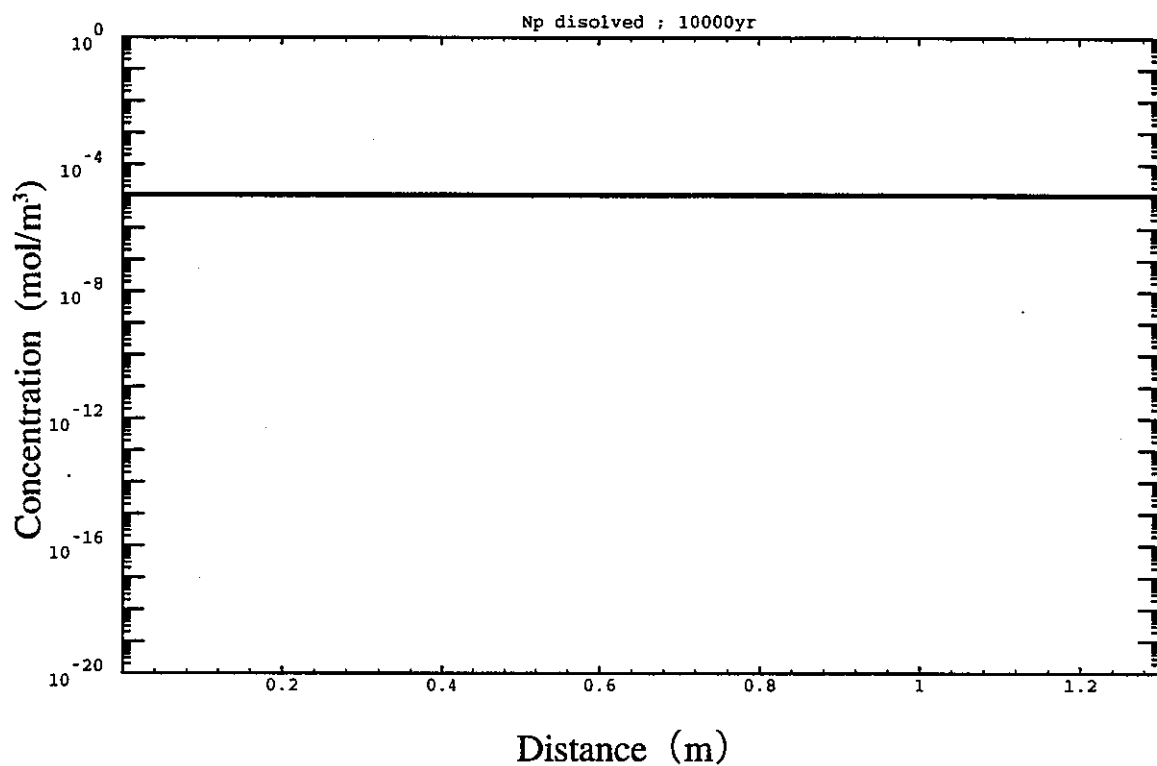


図 3.2.1.3-1 (1) 人工バリア中の溶存濃度 (Np)

アクチニドコロイドケース (F-2 #2)

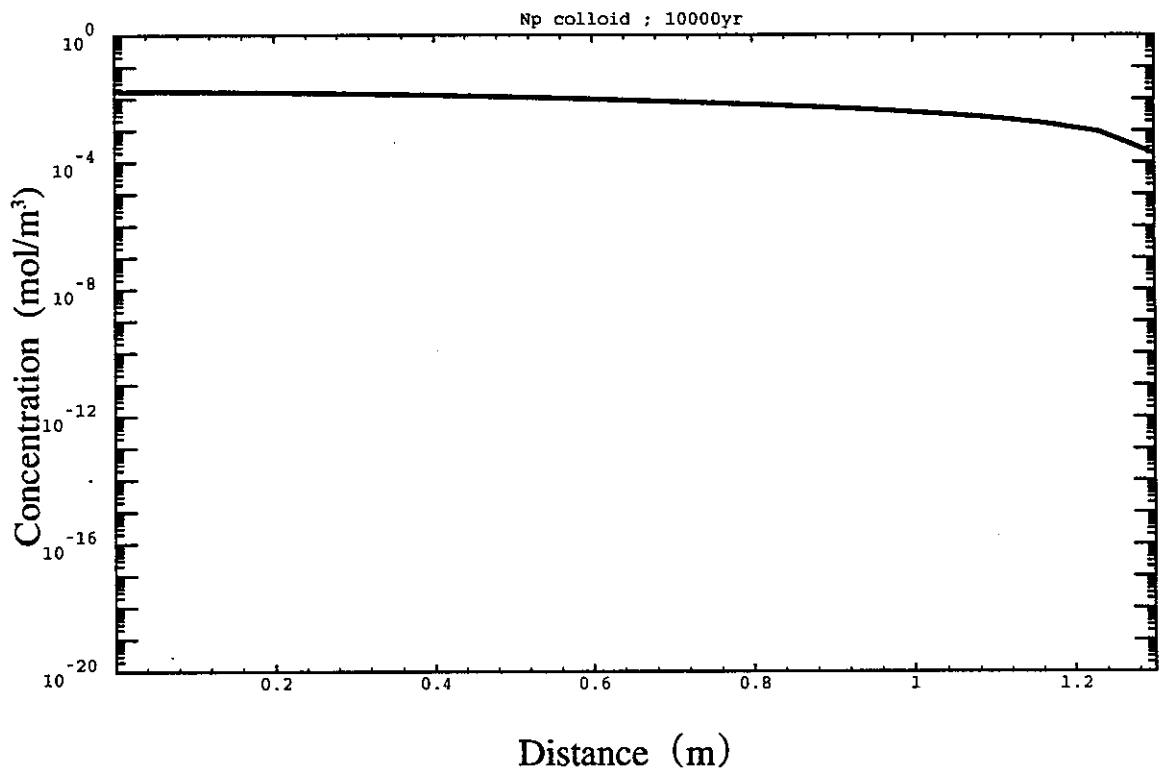


図 3.2.1.3-1 (2) 人工バリア中のコロイド濃度 (Np)

アクチニドコロイドケース (F-2 #2)

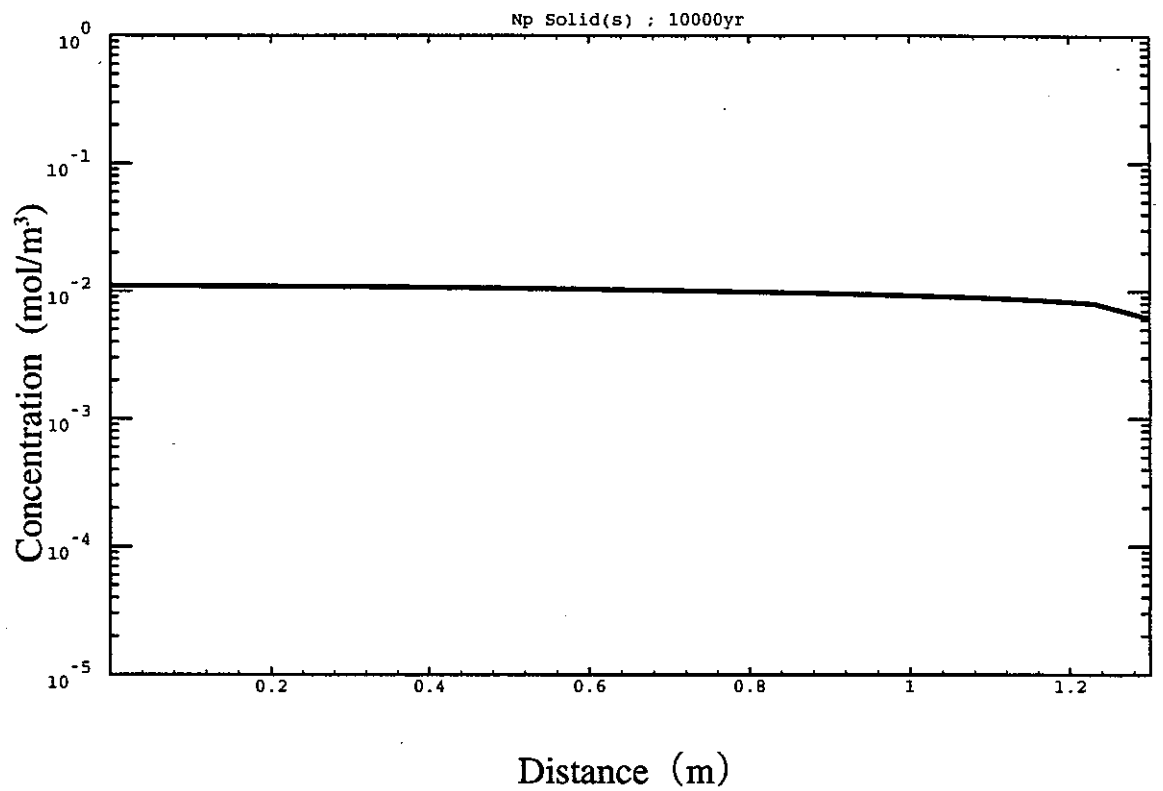


図3.2.1.3-1 (3) 人工バリア中の安定相濃度 (Np)  
 アクチニドコロイドケース (F-2 #2)

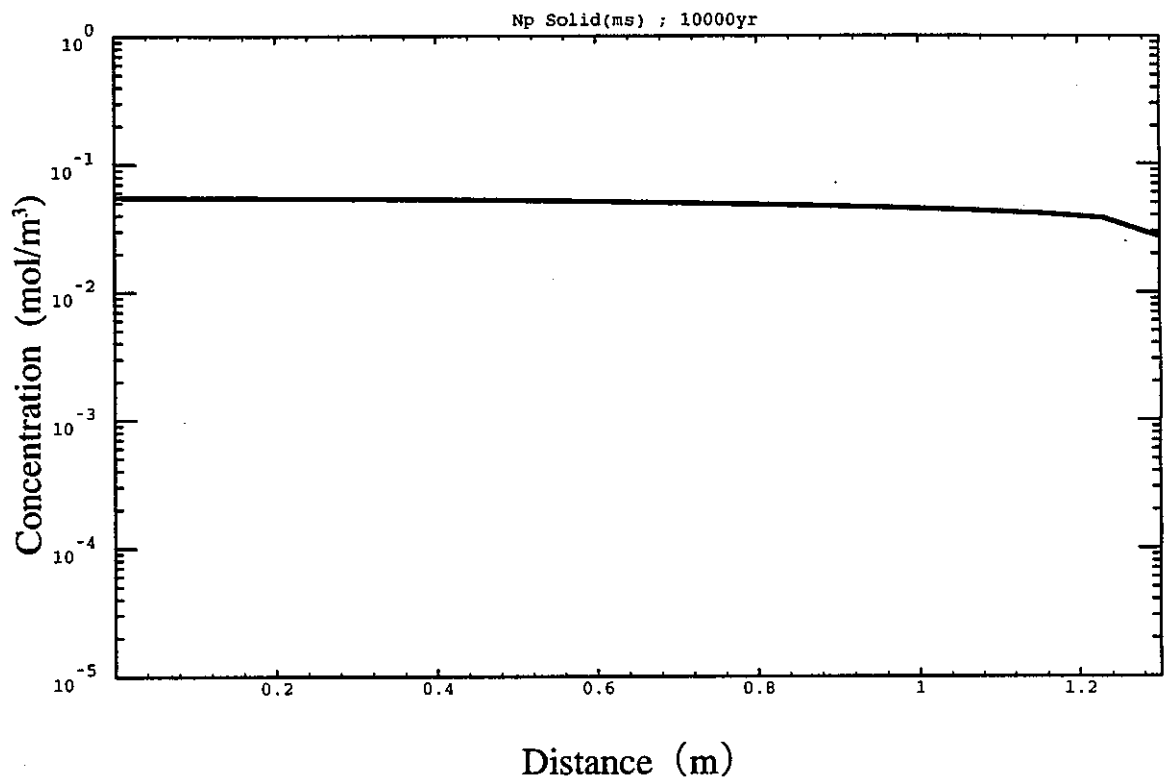


図 3.2.1.3-1 (4) 人工バリア中の準安定相濃度 (Np)

アクチニドコロイドケース (F-2 #2)

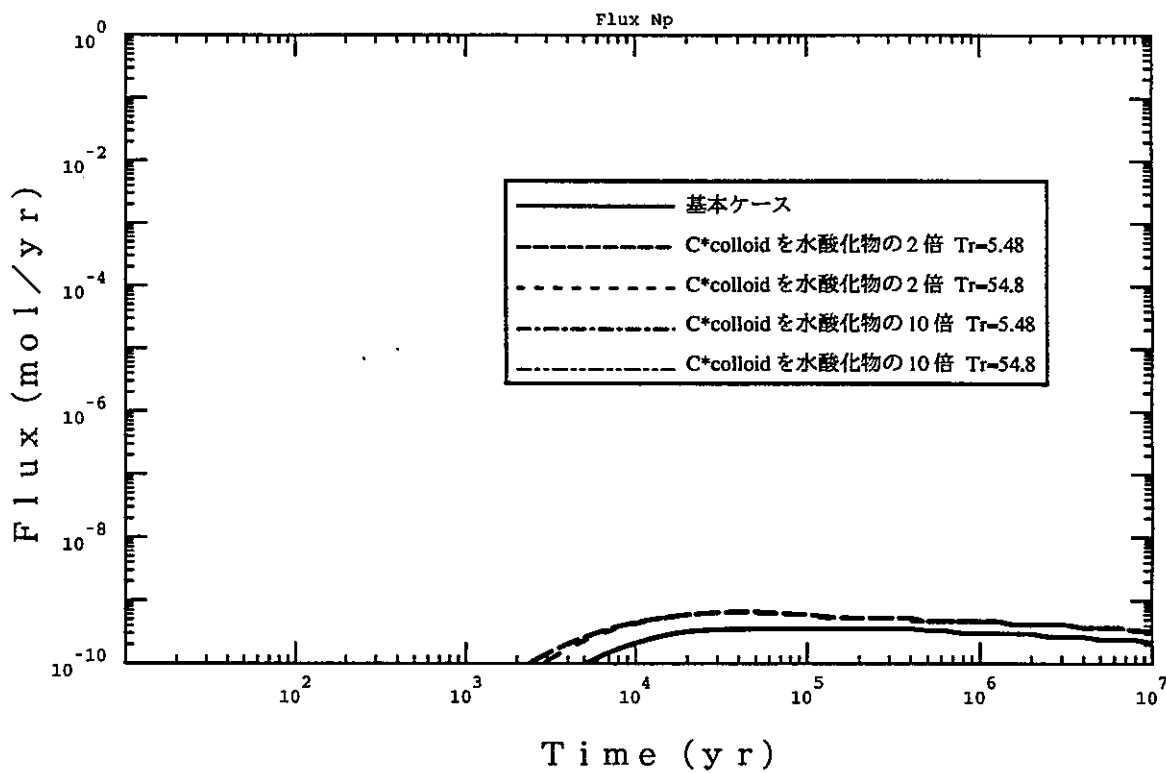


図 3.2.1.3-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 アクチニドコロイドケース  $\mu = 10, 100$  (F-1)

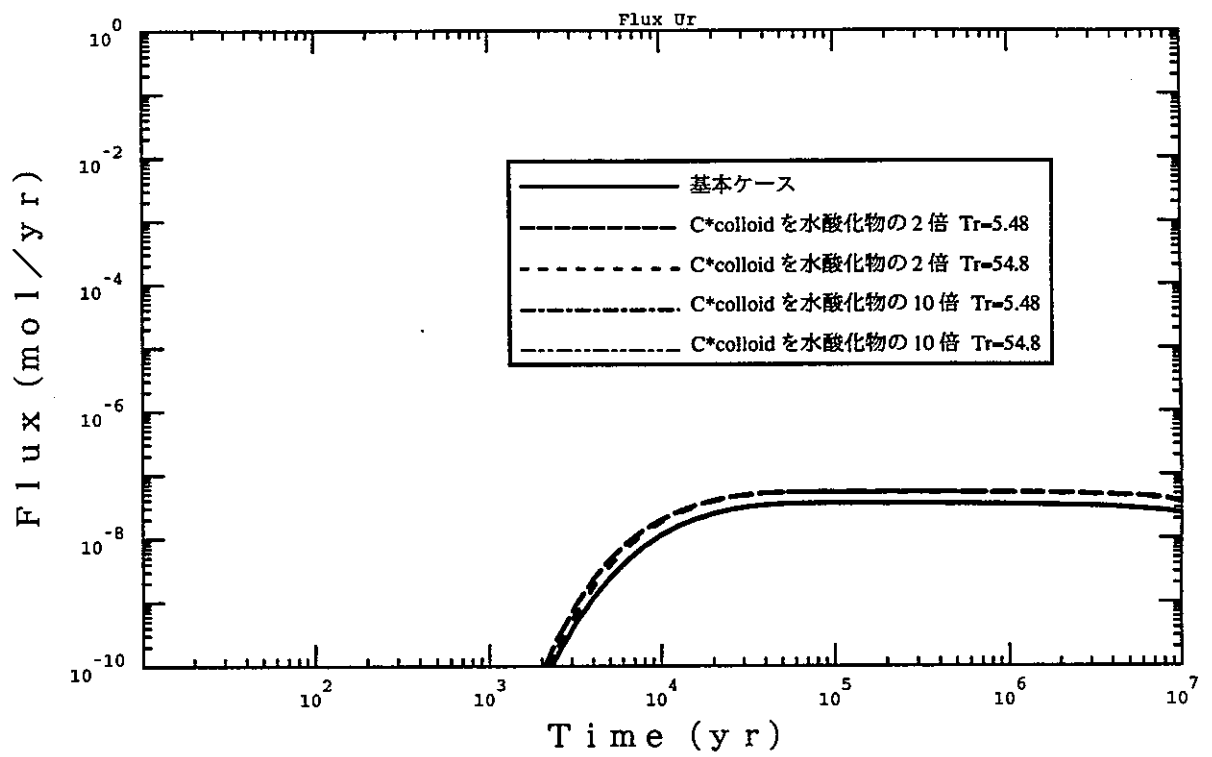


図 3.2.1.3-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 アクチニドコロイドケース  $\mu = 10, 100$  (F-1)



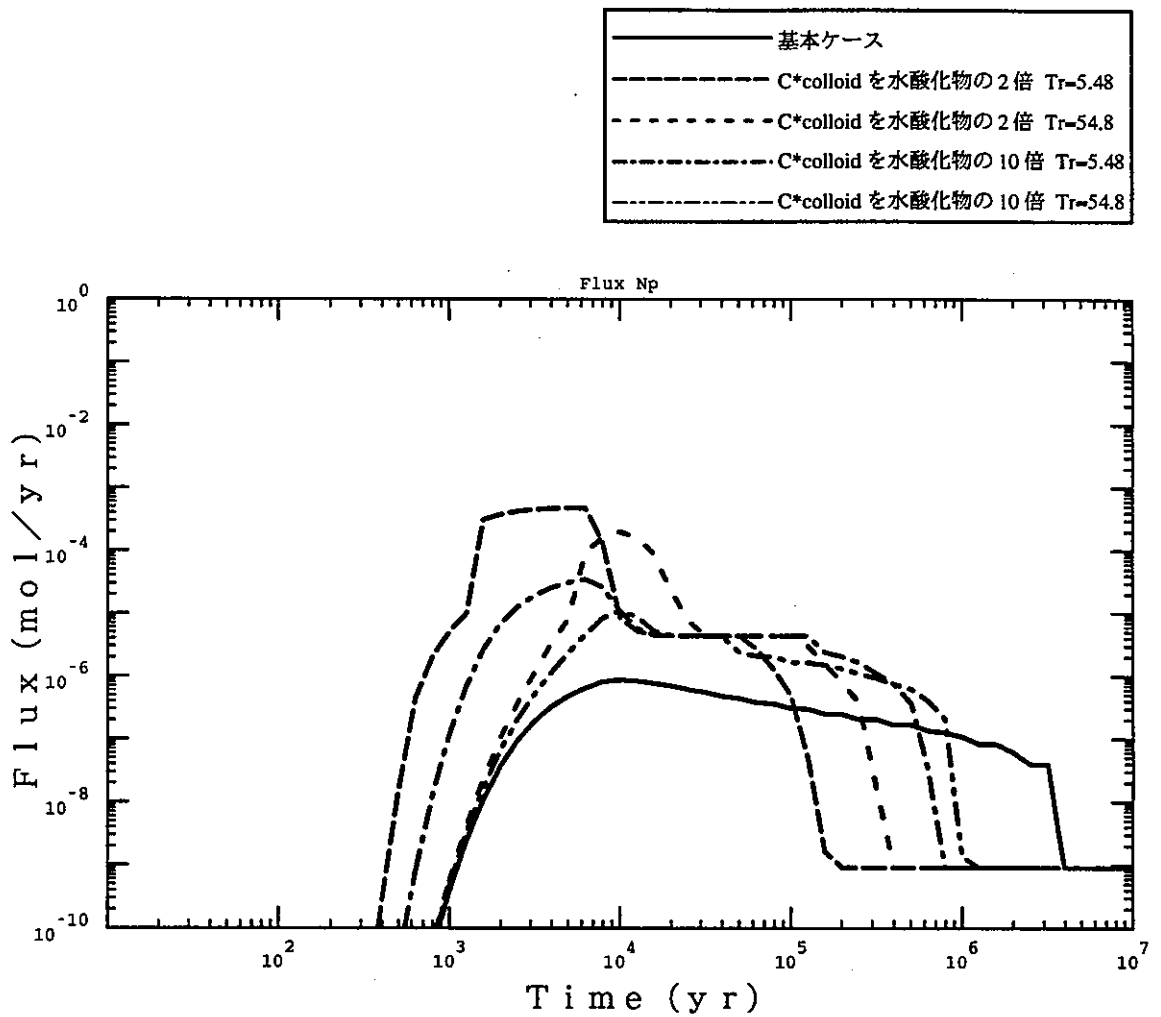


図 3.2.1.3-2 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 アクチニドコロイドケース  $\mu = 0.1, 1$  (F-2)

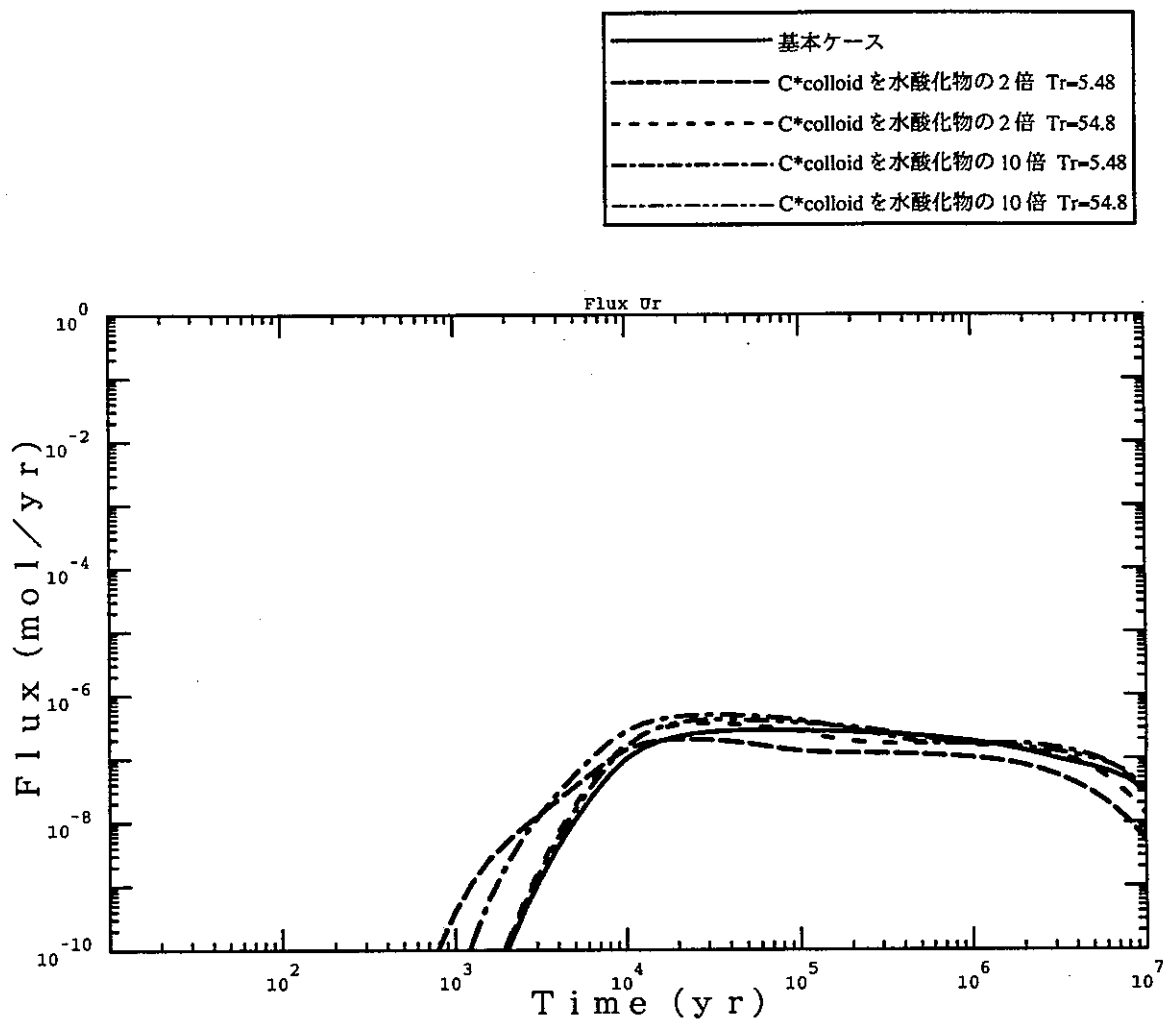


図 3.2.1.3-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 アクチニドコロイドケース  $\mu = 0.1, 1$  (F-2)

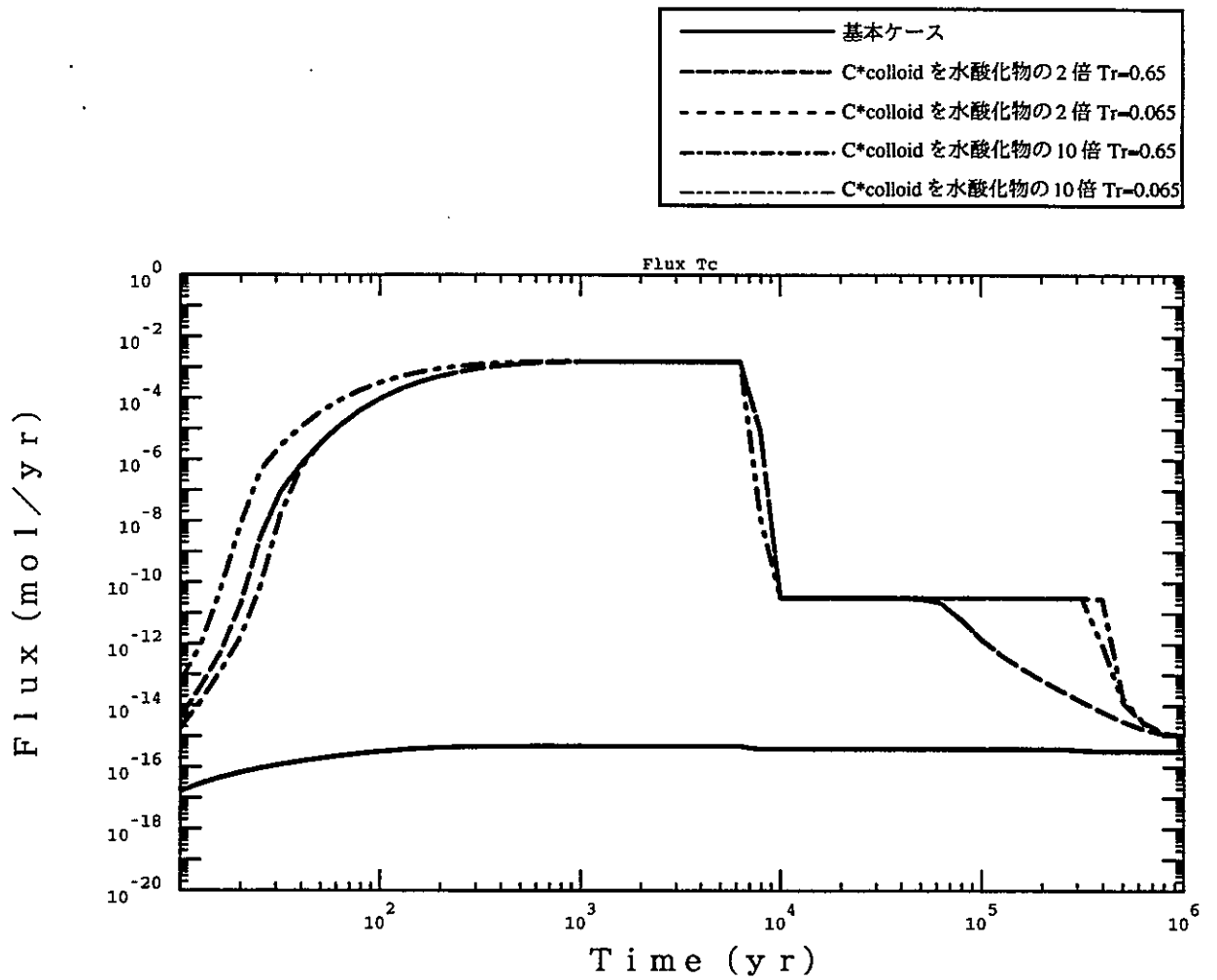


図 3.2.1.3-3 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Tc)  
 難溶解性核分裂生成物コロイドケース  $\mu = 10, 100$  (G-1)

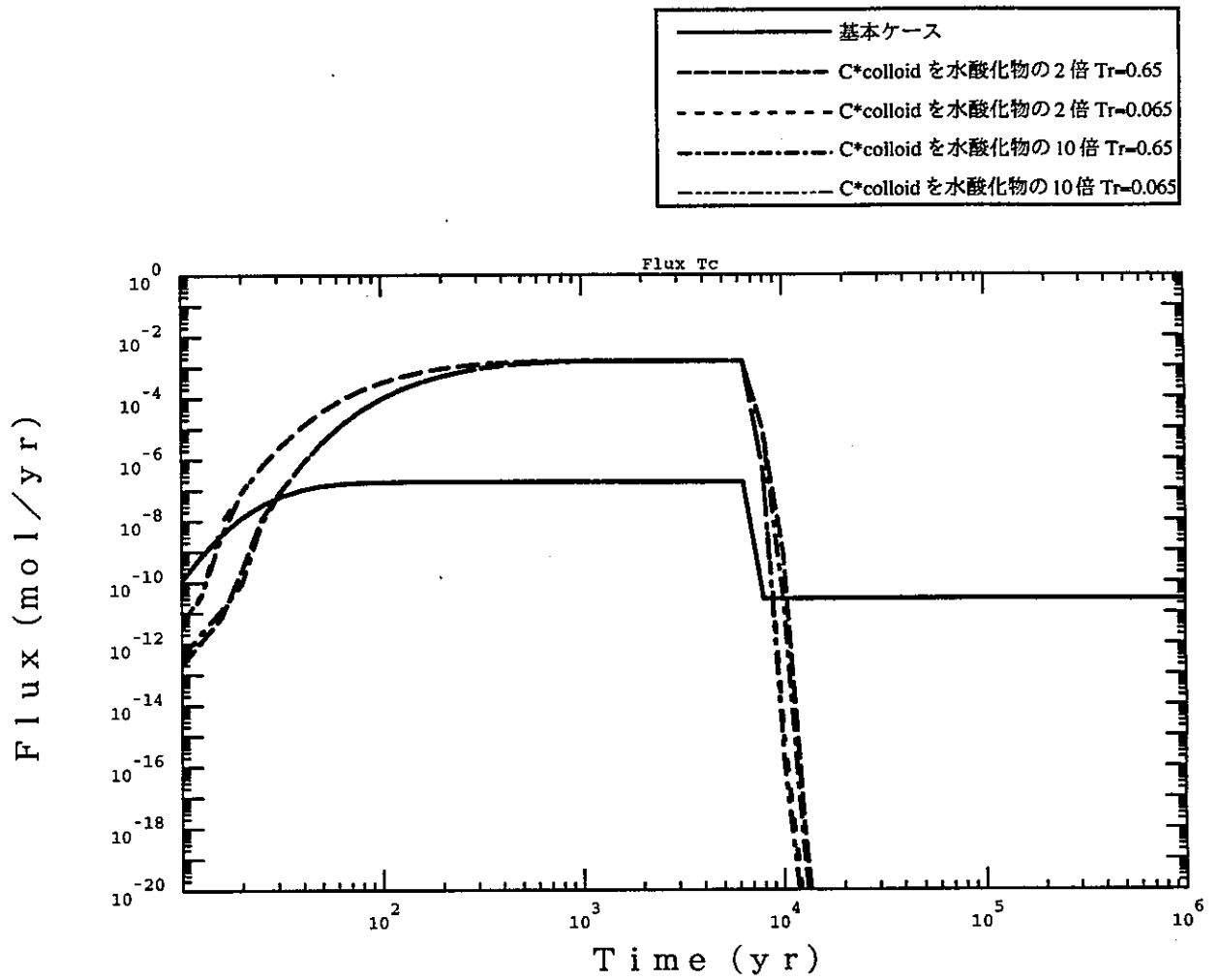
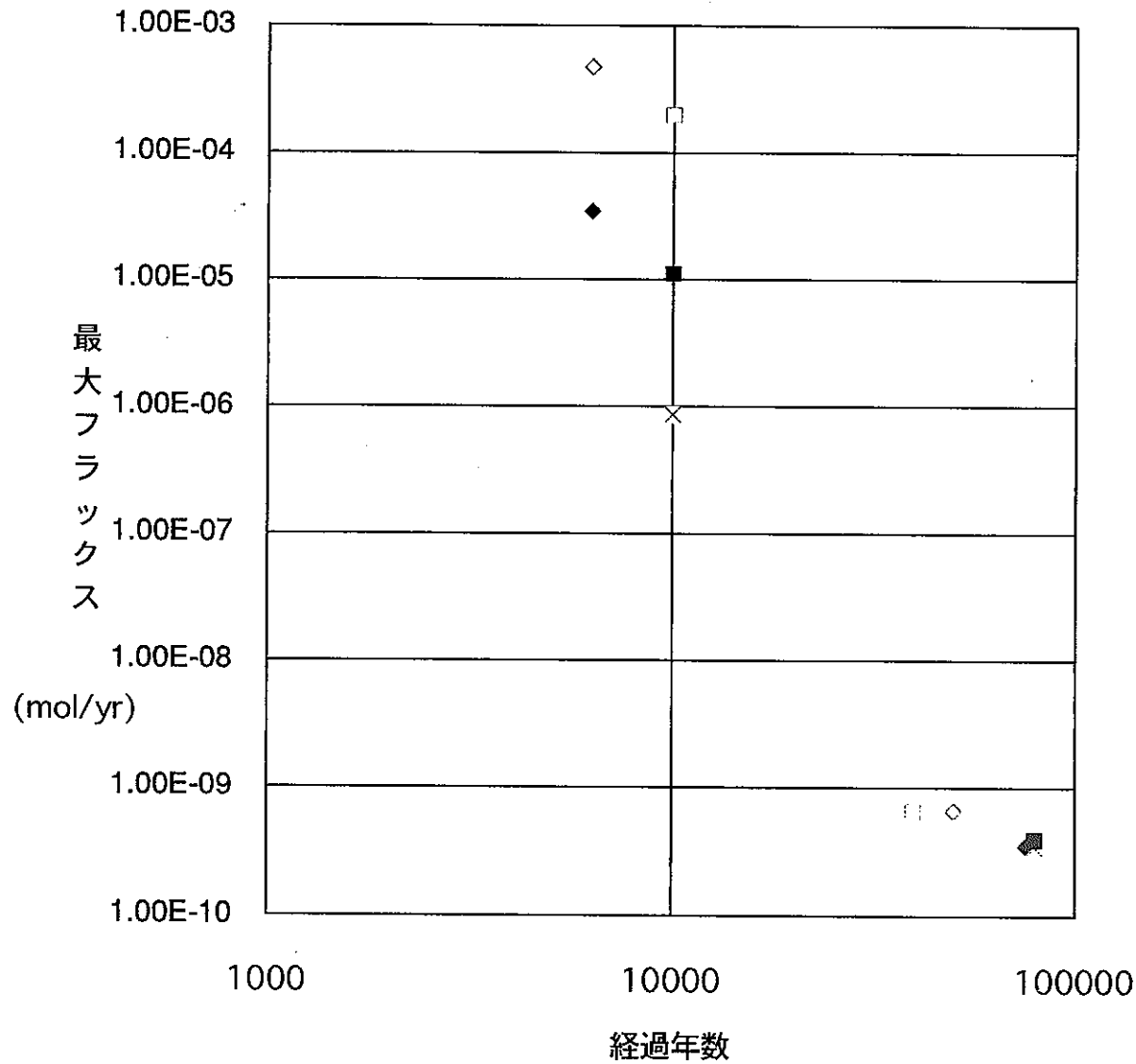
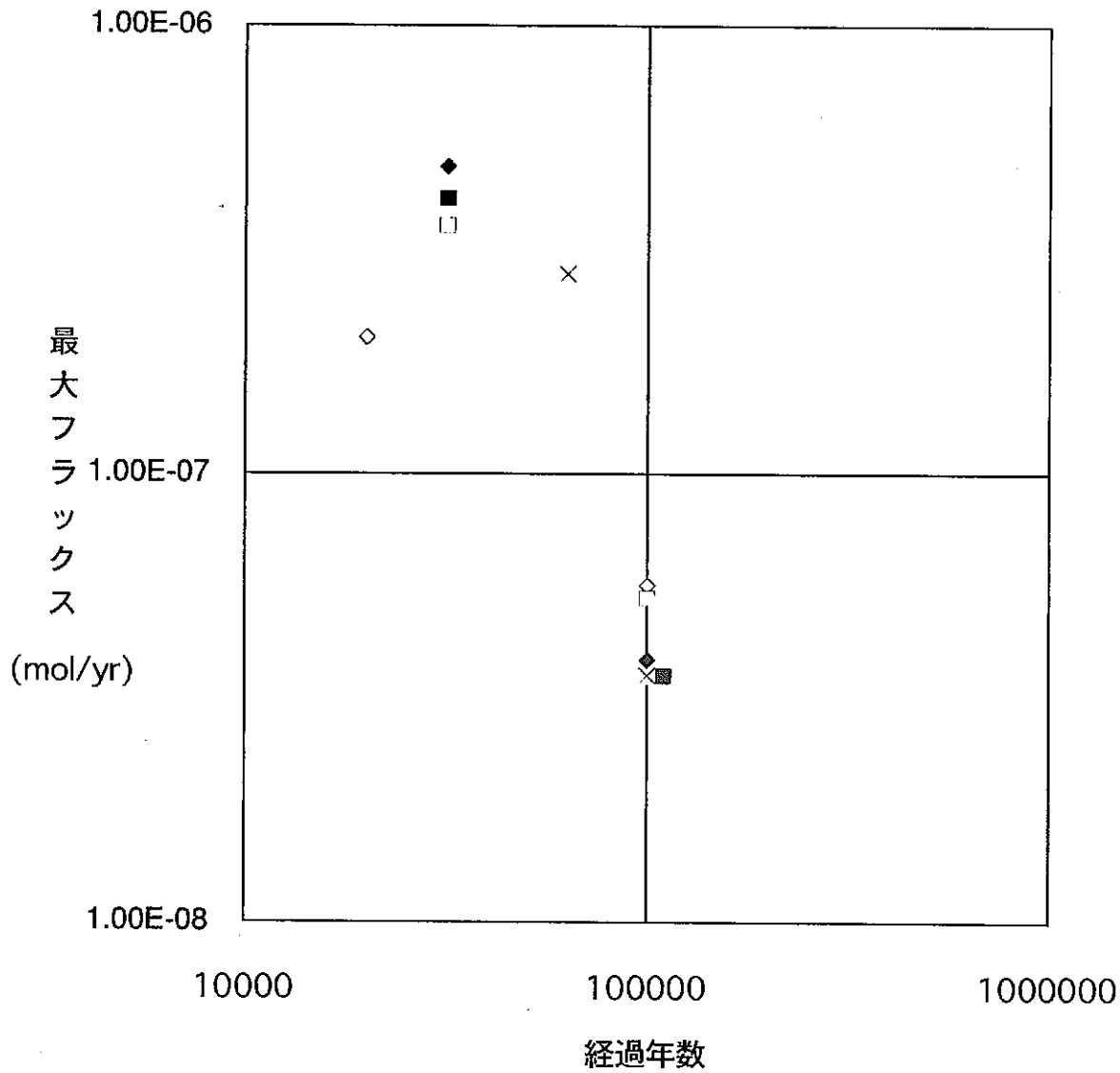


図3.2.1.3-3 (2) 人工バリアからの核種放出率 (Tc)  
 難溶解性核分裂生成物コロイドケース  $\mu = 0.1, 1$  (G-2)



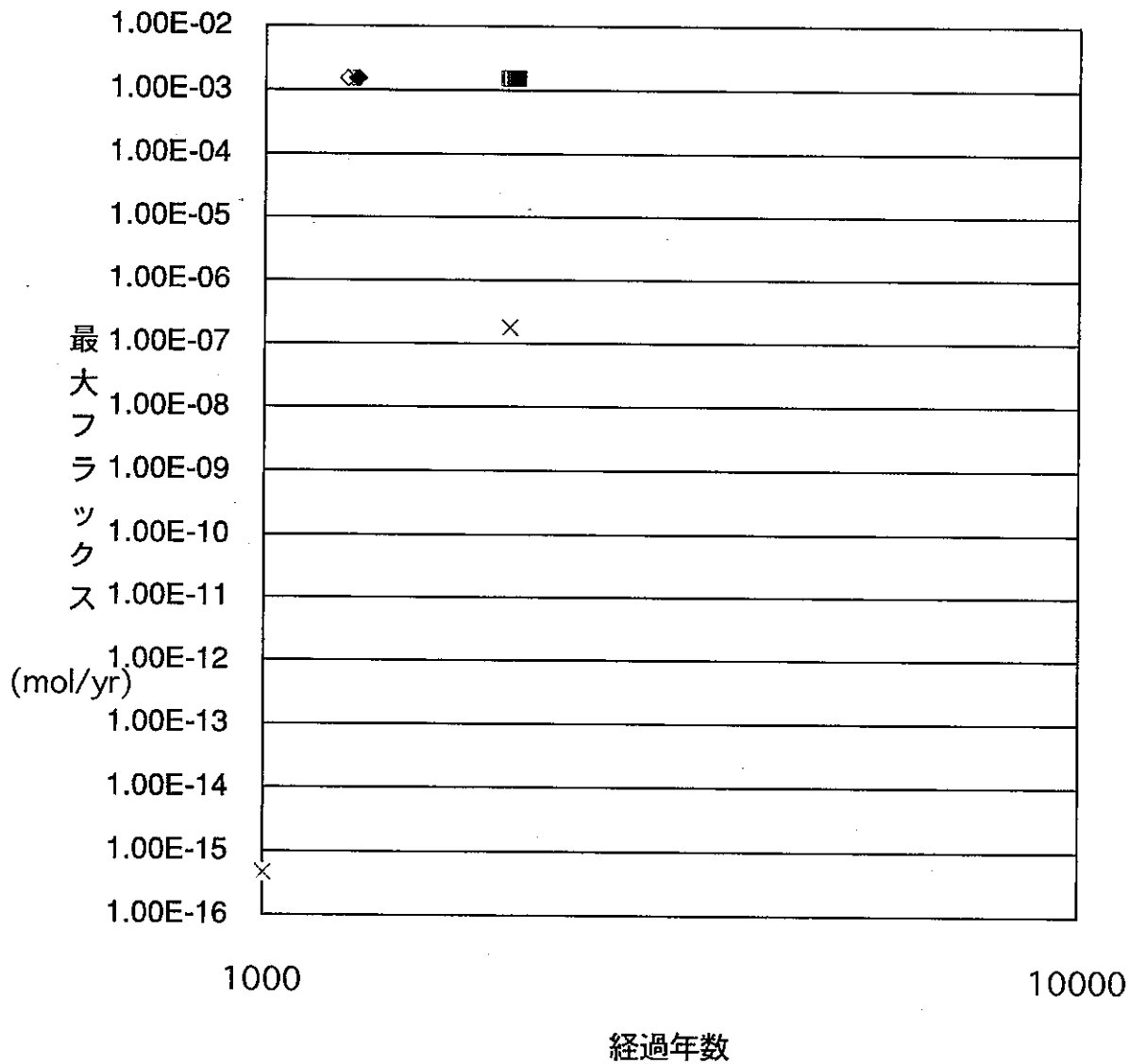
- × 基本ケース  $\mu=10, 100$
- × 基本ケース  $\mu=0.1, 1$
- ◇ コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=5.48  $\mu=10, 100$
- ◇ コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=5.48  $\mu=0.1, 1$
- コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=54.8  $\mu=10, 100$
- コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=54.8  $\mu=0.1, 1$
- ◆ コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=5.48  $\mu=10, 100$
- ◆ コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=5.48  $\mu=0.1, 1$
- コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=54.8  $\mu=10, 100$
- コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=54.8  $\mu=0.1, 1$

図3.2.1.3-4(1) コロイド生成・移行についての  
感度解析結果のまとめ(Np-237)



- × 基本ケース  $\mu=10、100$
- × 基本ケース  $\mu=0.1、1$
- ◇ コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=5.48  $\mu=10、100$
- ◇ コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=5.48  $\mu=0.1、1$
- コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=54.8  $\mu=10、100$
- コロイド溶解度を水酸化物の2倍 NpのTr=54.8  $\mu=0.1、1$
- ◆ コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=5.48  $\mu=10、100$
- ◆ コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=5.48  $\mu=0.1、1$
- コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=54.8  $\mu=10、100$
- コロイド溶解度を水酸化物の10倍 NpのTr=54.8  $\mu=0.1、1$

図3.2.1.3-4(2) コロイド生成・移行についての  
感度解析結果のまとめ(U-233)



- × 基本ケース  $\mu=10、100$
- ×  $\mu=0.1、1$
- ◇ コロイド溶解度を水酸化物の2倍 TcのTr=0.064  $\mu=10、100$
- ◇ コロイド溶解度を水酸化物の2倍 TcのTr=0.064  $\mu=0.1、1$
- コロイド溶解度を水酸化物の2倍 TcのTr=0.64  $\mu=10、100$
- コロイド溶解度を水酸化物の2倍 TcのTr=0.64  $\mu=0.1、1$
- ◆ コロイド溶解度を水酸化物の10倍 TcのTr=0.064  $\mu=10、100$
- ◆ コロイド溶解度を水酸化物の10倍 TcのTr=0.064  $\mu=0.1、1$
- コロイド溶解度を水酸化物の10倍 TcのTr=0.64  $\mu=10、100$
- コロイド溶解度を水酸化物の10倍 TcのTr=0.64  $\mu=0.1、1$

図 3.2.1.3-4(3) コロイド生成・移行についての  
感度解析結果のまとめ(Tc-99)

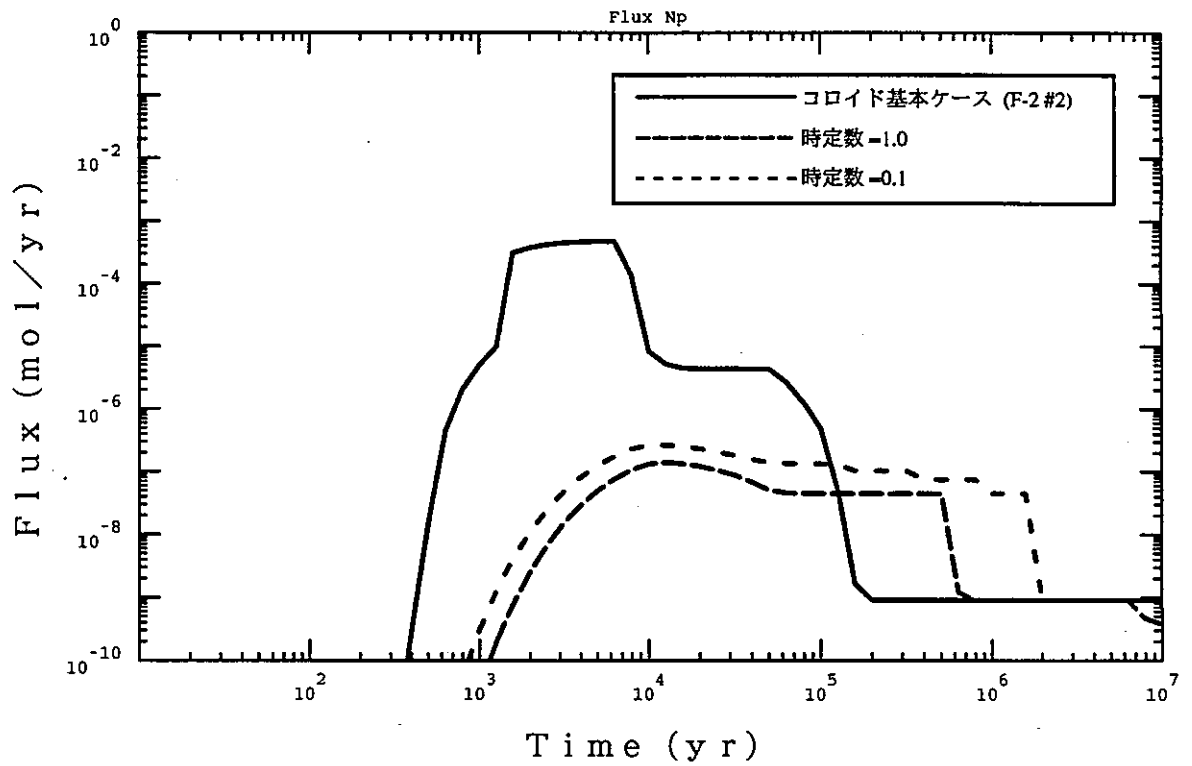


図 3.2.1.3-5 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 コロイド凝集についての解析ケース  $\mu = 0.1, 1$



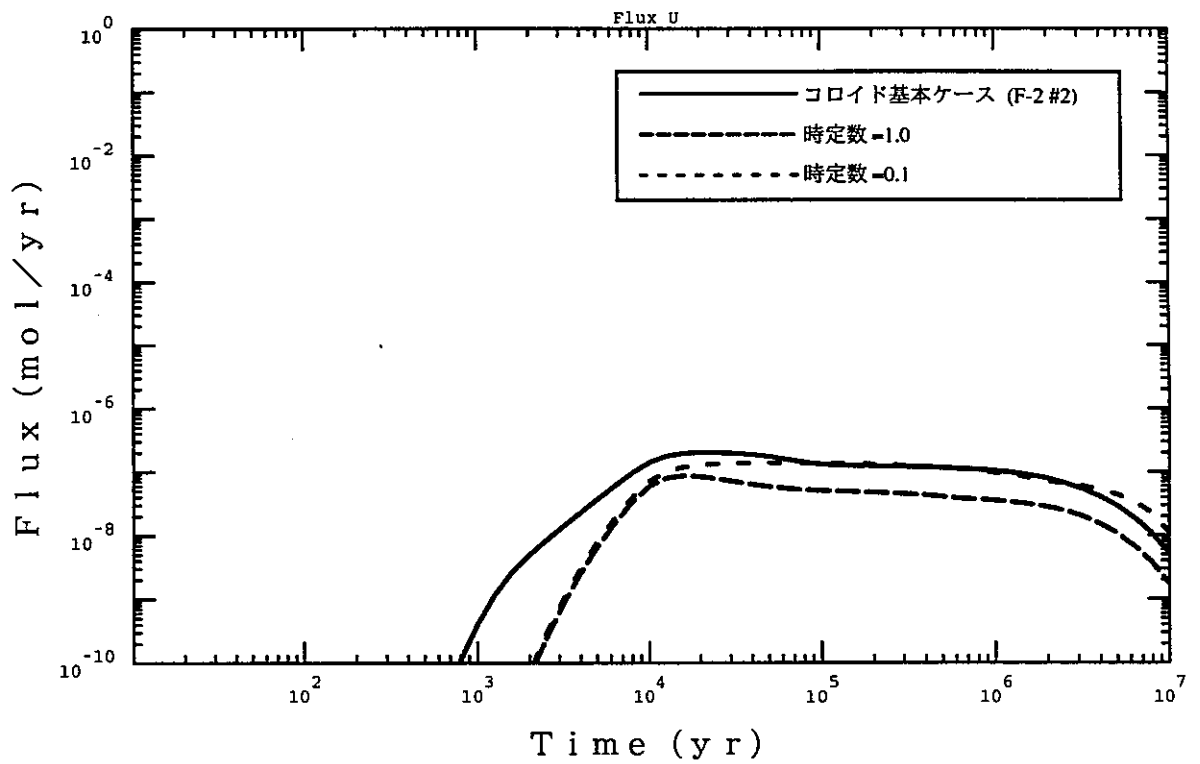


図 3.2.1.3-5 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 コロイド凝集についての解析ケース  $\mu = 0.1, 1$

## 3.2.2 鉄・ケイ素共沈

### 3.2.2.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

鉄・ケイ素共沈問題は、これまでのケースでは考慮されていなかったケイ化鉄の沈澱形成を取り入れた物であり、ここでは、ケイ素についてアモルファスシリカに加えて第二の沈澱相を考えた解析を行う。従って、ダミー変数及び反応速度項の具体形は3.1.1に述べたものと同じであり、ケイ化鉄についての溶解度と反応速度定数とを設定することによって計算を行うことが可能である。

### 3.2.2.2 解析条件

本ケースでは、可溶性であり従ってガラス浸出率律速であるCs-135を対象として基本ケース（ケイ化鉄の反応速度0）と、これに対する感度解析のための6ケースの解析を行った。各ケースでの条件設定を、表3.2.2.2-1にまとめる。

表3.2.2.2-1 鉄・ケイ素共沈についての計算ケース設定

ケース名	変動パラメータ値
E-1	$(\mu_{\text{amsi}}, \mu_{\text{fesi}}) = (100, 0)$
E-2 #1 #2	$(\mu_{\text{amsi}}, \mu_{\text{fesi}}) = (100, 10)$ 上記以外はE-1と同じ KdCs ; 標準値の1/10
E-3 #1 #2	$(\mu_{\text{amsi}}, \mu_{\text{fesi}}) = (10, 10)$ 上記以外はE-1と同じ KdCs ; 標準値の1/10
E-4 #1 #2	$(\mu_{\text{amsi}}, \mu_{\text{fesi}}) = (1, 10)$ 上記以外はE-1と同じ KdCs ; 標準値の1/10

\*ケイ化鉄の溶解度については、十分に小さい物と仮定し、解析上はアモルファスシリカの溶解度の $10^{-5}$ 倍とした。

### 3.2.2.3 結果

各ケースにおけるCs-135の核種放出率経時変化の計算結果を、図3.2.2.3-1にまとめる。いずれのケースでも、基本ケースからの上昇分は1桁以内であり、鉄・共沈が生じたとしてもその影響はさほど大きなものとはならないことが示されている。これは、本解析で仮定しているガラス固化体の溶解速度の標準値がそもそも大きく、ケイ化鉄の沈澱速度定数10では常に供給過剰な状態、つまり、ガラス近傍のケイ素濃度がガラス溶解速度式の第一項が有意となるほどには濃度が低下しない状態にあるためと考えられる。そこで、ケイ化鉄の沈澱速度定数を100とした2ケース（アモルファスシリカの溶解速度定数をそれぞれ10及び100としている）の解析を行った。結果を図3.2.2.3-3に示す。ここでも、基本ケースからの放出率の増加は有意なものではない。これは、保守的に設定された基本ケースのガラス溶解速度 $k_r$ が、Cs-135のインベントリ限界放出の条件に近い物であることを示していると考えられる。

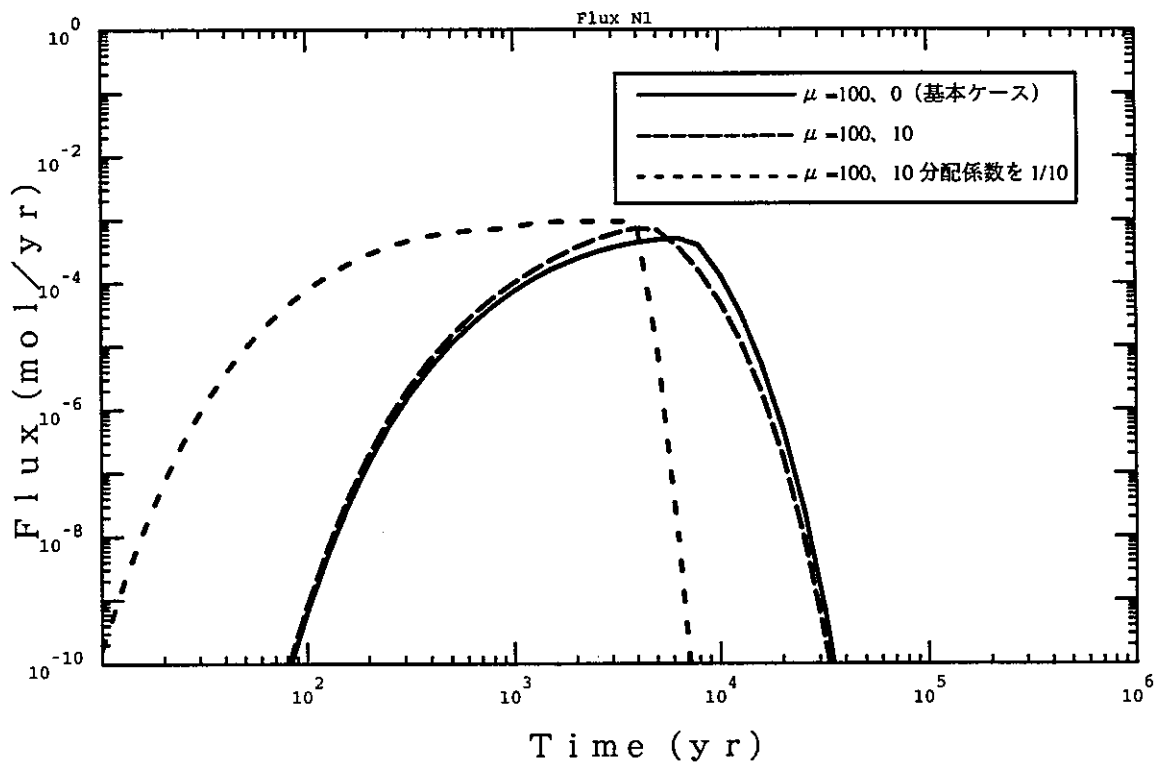


図 3.2.2.3-1 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Cs)

可溶性核分裂生成物基本ケースおよび  
鉄・シリカ共沈についての感度解析 (E-1、2)

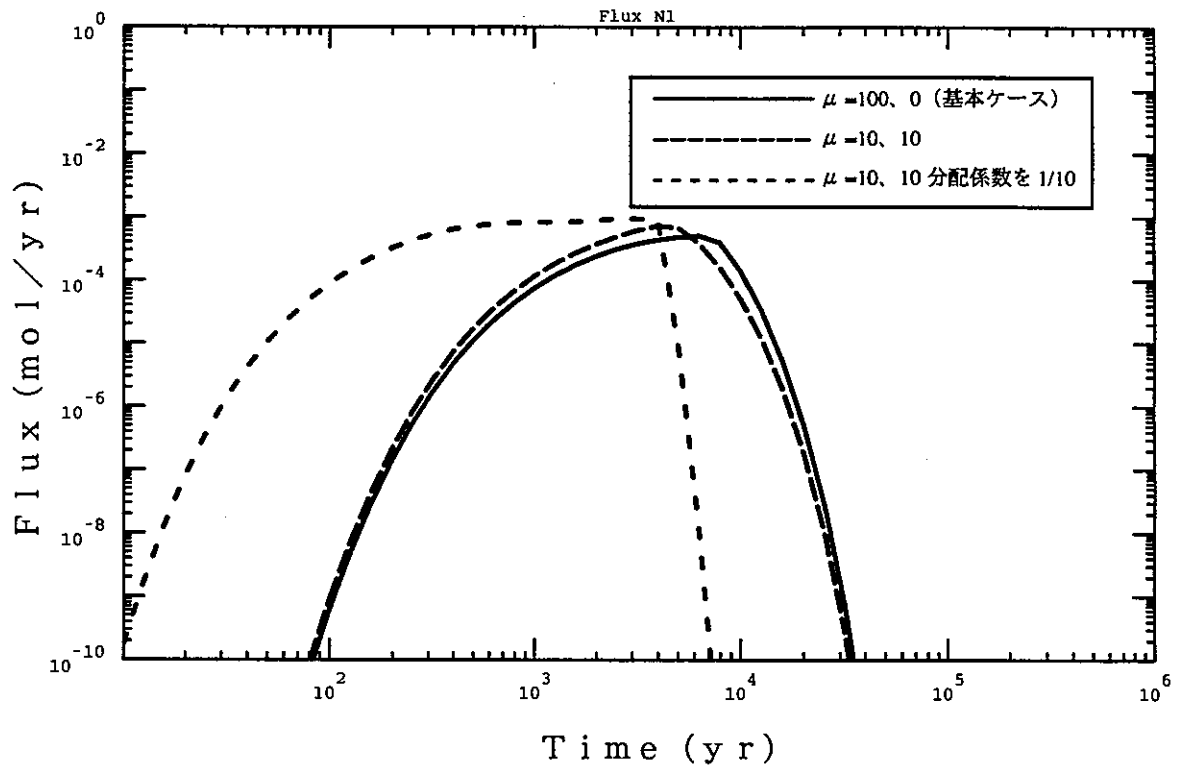


図 3.2.2.3-1 (2) 人工バリアからの核種放出率 (Cs)  
 可溶性核分裂生成物基本ケースおよび  
 鉄・シリカ共沈についての感度解析 (E-1、3)

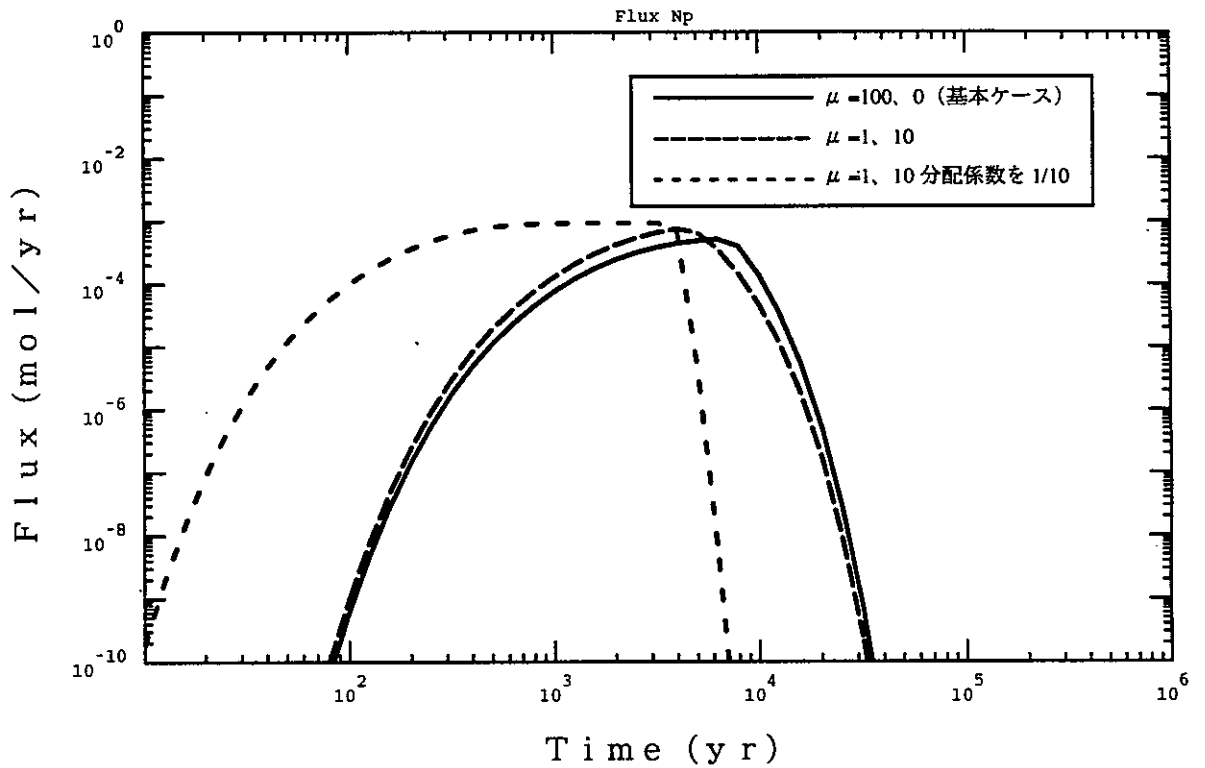


図3.2.2.3-1 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Cs)  
 可溶性核分裂生成物基本ケースおよび  
 鉄・シリカ共沈についての感度解析 (E-1、4)

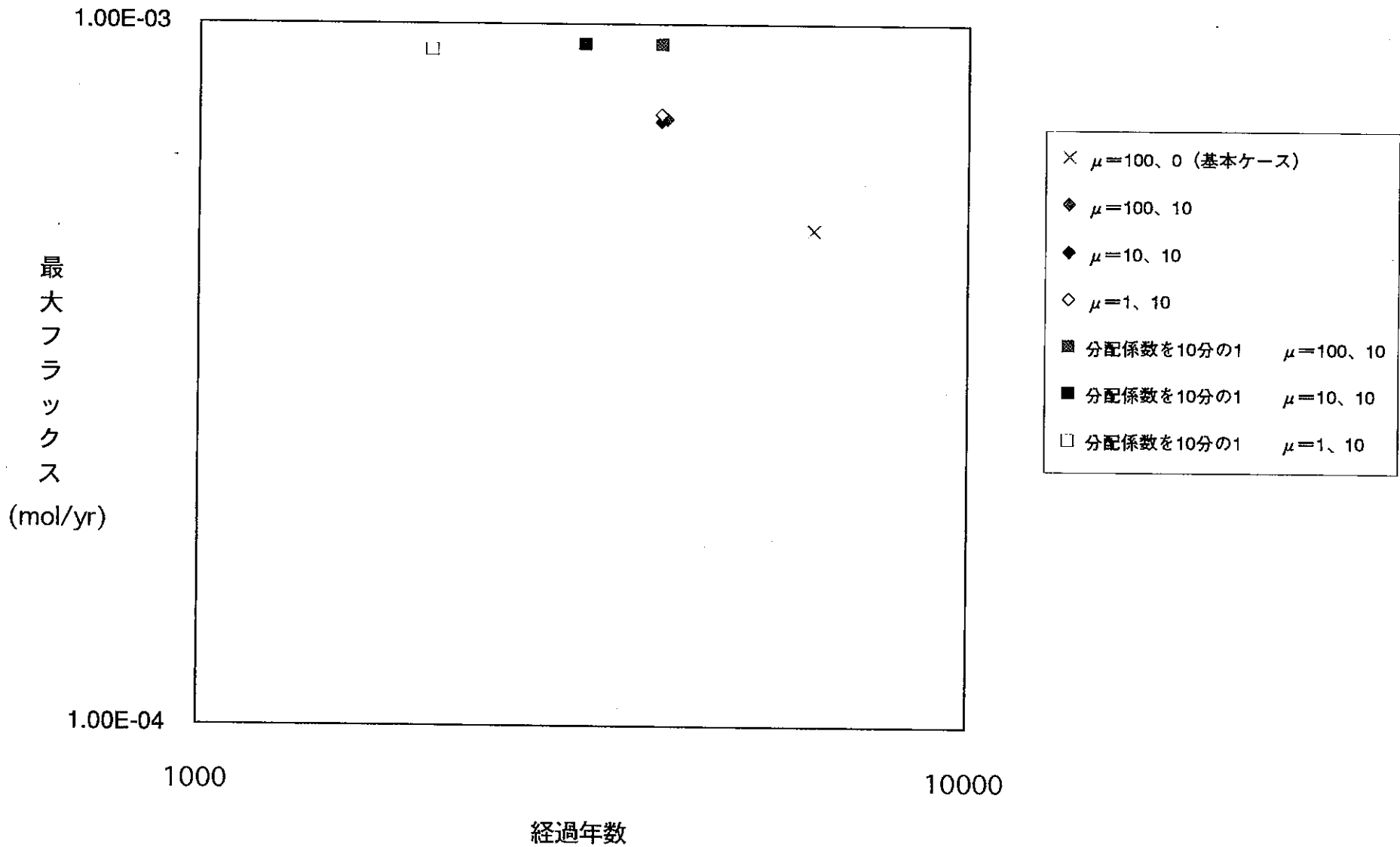


図3.2.2.3-2 可溶性核分裂生成物についての基本ケース及び鉄・シリカ共沈についての感度解析結果のまとめ



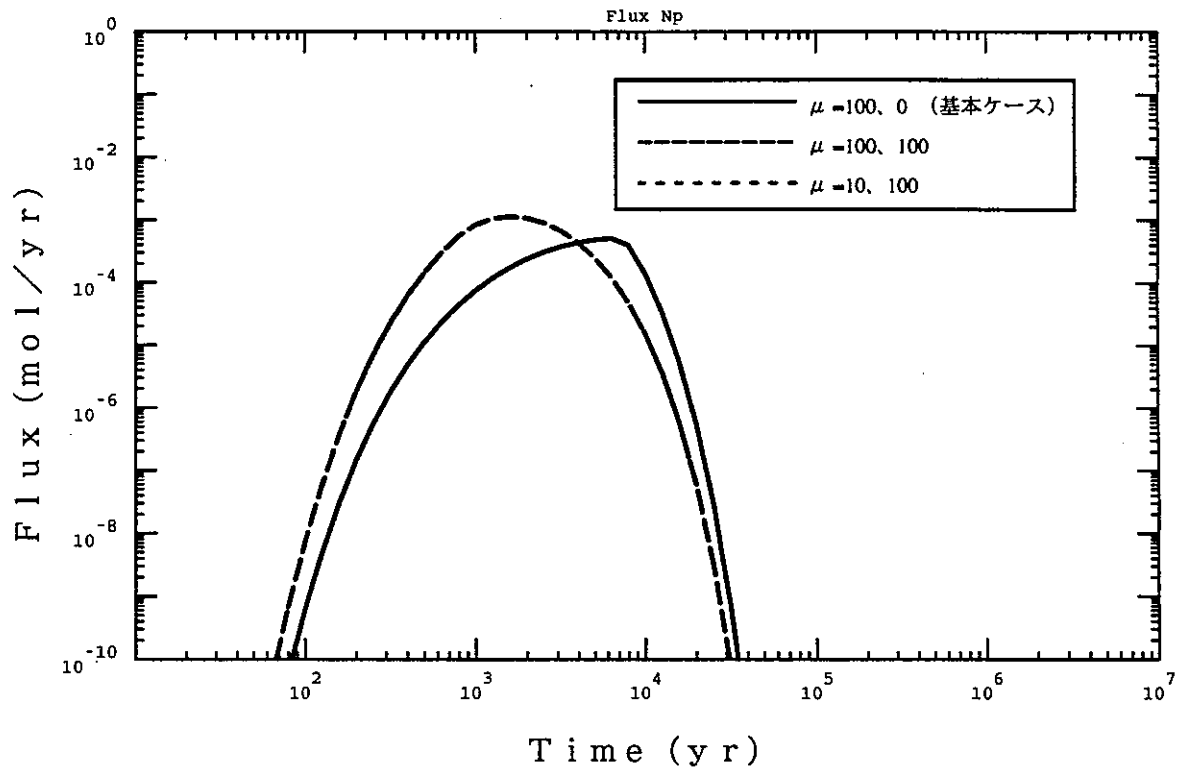


図 3.2.2.3-3 人工バリアからの核種放出率 (Cs)  
 ケイ化鉄の沈澱が速い場合の可溶性核分裂  
 生成物 (Cs-135) の放出率計算結果

### 3.2.3 結晶化

#### 3.2.3.1 ダミー変数及び反応速度項の具体形

本ケースでは、一旦準安定相として沈澱した核種が、その後液相に溶け出すことなく直接的に（固相－固相の変化として）安定相へと変化する結晶化を考え、モデル化を行った。ここでは、液相側の濃度配分は基本ケースと全く同じであるため、ダミー変数の形式も3.1.1で定義したものと同じである。但し、反応速度項については、上記に対応して、基本ケースで考えたものに加えて準安定相から安定相への変化速度 $R_{\text{crystalisation}}$ を以下の様に定義して解析を行った。

$$R_{\text{crystalisation}} = \mu_{\text{crystalization}} (S_{\text{metastable}}) H[S_{\text{metastable}}]. \quad (9)$$

但し、

$\mu_{\text{crystalisation}}$  ; 結晶化についての時定数

$S_{\text{crystalisation}}$  ; 準安定相濃度

#### 3.2.3.2 解析条件

解析条件としては、基本ケースにおいて溶解・沈澱速度の比較的遅いケースA-3を選択し、これに対して前節で述べた $\mu_{\text{crystalisation}}$ をそれぞれ0.1及び1.0とした二つのケースについて解析を行った。

#### 3.2.3.3 結果

上記2ケースと基本ケースA-3の人工バリアからの核種放出率を比較した結果が、図3.2.3.3-1である。放出率がピークを過ぎてやがて低下するまでの挙動は、結晶化を考慮した場合としない場合とでは大きく異なる。これは、基本ケースでは準安定相が人工バリア内に存在する条件での定常状態に対応するプラトーが40万年程度継続しているのに対して、結晶化を考慮したケースでは準安定相が不可逆的に安定相へと変化することによって消費されるために放出率がより速やかに低下しているためである。しかし、これらの相異は破過曲線のテイルについての物であり、核種放出率の最大値自体には全く変化は見られ

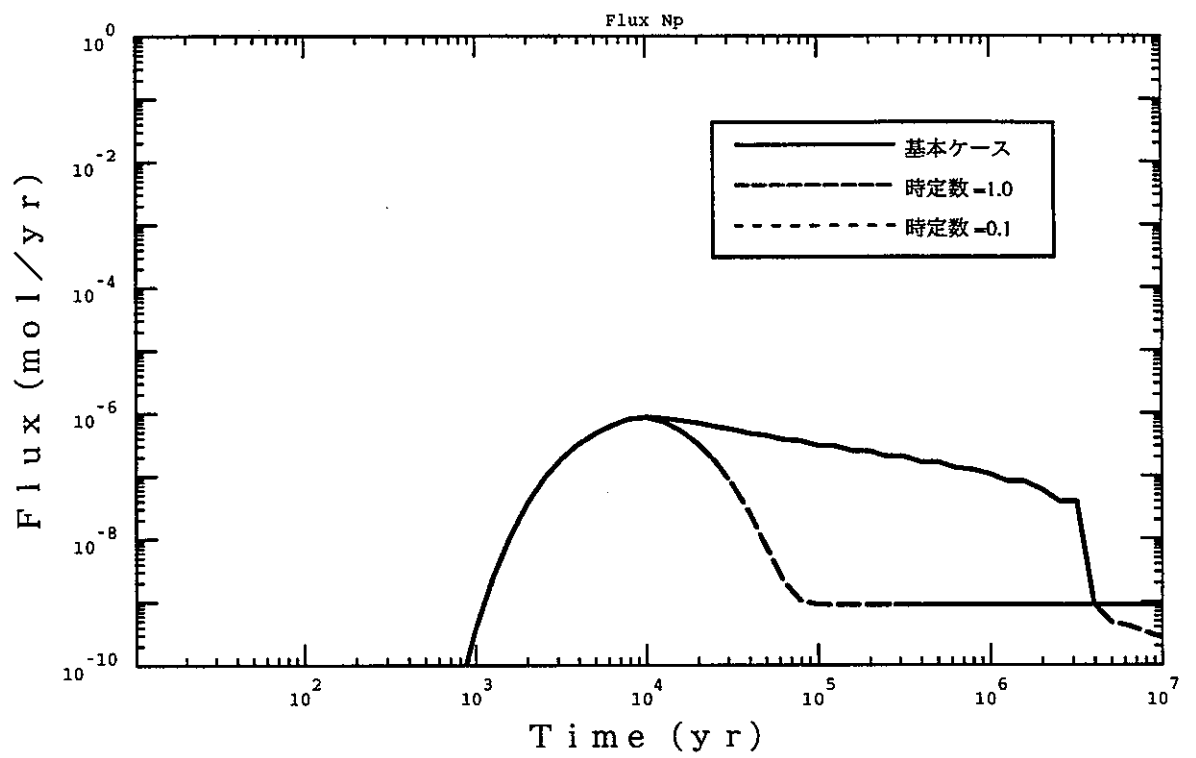


図 3.2.3.3-1 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 結晶化についての解析ケース  $\mu = 0.1, 1$

ない。

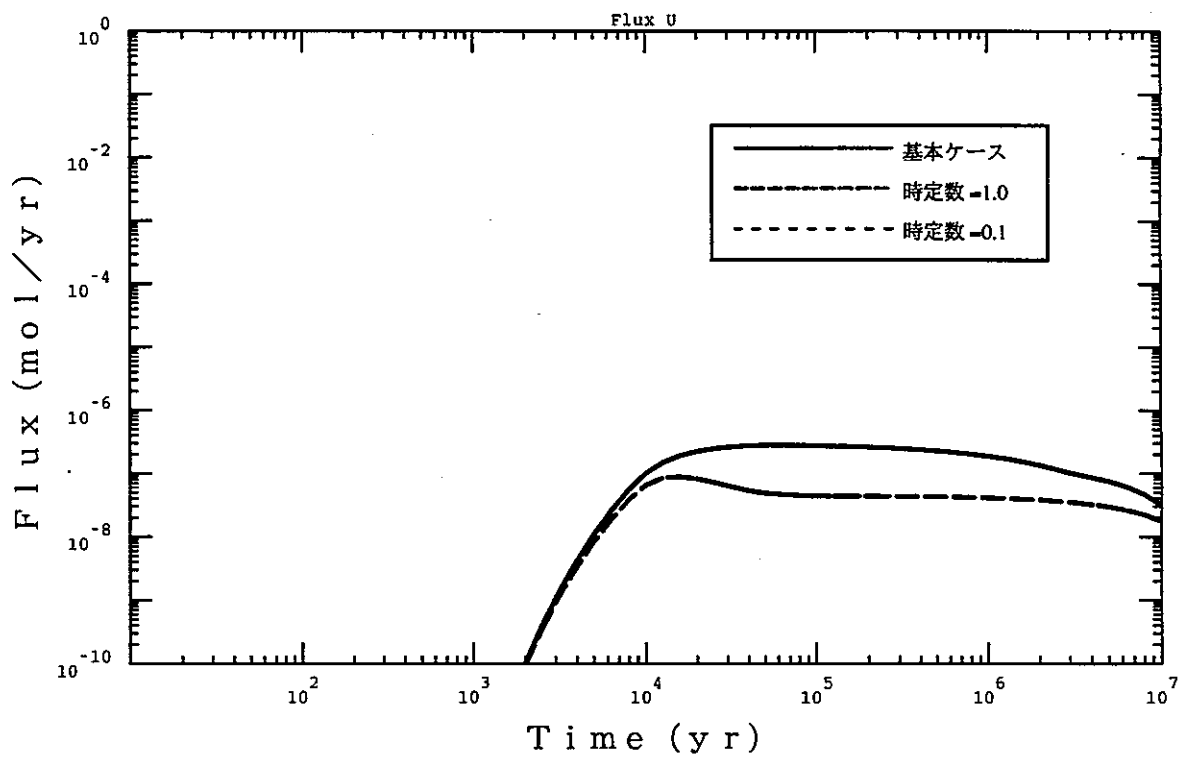


図 3.2.3.3-1 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
結晶化についての解析ケース  $\mu = 0.1, 1$

#### 4. 環境条件変化についての感度解析

3.に述べた核種移行挙動自体についての感度解析に引き続き、核種移行の生じる場（ニアフィールド）の環境条件が、時間あるいは空間的に一定ではない状況を考慮して、各種の環境条件変化が人工バリアからの核種放出率にどのような影響を及ぼし得るかについて感度解析を実施した。本章では、その内容及び結果についてまとめることとする。

ここでの解析では、核種移行モデル自体は基本ケース、すなわち3.1.1に述べたものを用いることとする。また、核種移行パラメータのうち最も重要性が高いと考えられる溶解度に着目することとして、溶解度を規定する環境条件である地下水化学、特にその酸化還元状態を中心として環境条件変化の影響を検討することとした。この解析を実施するためには、その前提として、酸化状態での地下水化学特性と、これに対応する放射性元素の溶解度を設定することが必要である。

まず、酸化性地下水の化学特性としては、King 等[King and Chapman, 1994]の検討を参考として、酸素分圧が高い大気開放条件で岩石と化学平衡にあるsynthetic な水の組成を算出した。地球化学計算において前提とした花崗岩地層の鉱物リストを表4-1に、また、EQ3/6コードに、SUPCRTデータベース[Johnson et al., 1992]を適用して行った地下水特性の算出結果を表4-2にまとめる。また、解析対象とする元素は、Am, Np, 及びUとし、これらについてHATCHES データベースとHARPHRQ コードの組み合わせで準安定相、及び安定相の溶解度を算出した結果を図4-3にまとめる。

以上の前提の下に行った解析の内容と結果を以下にまとめる。なお、環境条件変化のパターンとしては、

- 1) 時間変化のみ
- 2) 空間的不均質性のみ
- 3) 時間及び空間的な変化

という3つのレベルについて順に検討を行った。また、これらの環境条件変化につき、昨年度報告書に詳述した様に、個々の事象を詳細にモデル化するのではなく、引き起こさるであろう条件変化のパターンを模擬的に位置あるいは時間の関数として表現すること(Shadow 関数)により、核種移行に及び得る影響の種類と大きさを定量的に解析すると

いうアプローチを採った。

表 4-1 酸化性のsynthetic waterの地球化学特性設定のために仮定した鉱物のリスト  
(内陸部の花崗岩系地層を想定)

albite
microcline
calcite
phlogopite
muscovite
quartz
magnetite
hematite
pyrite



表 4-2 EQ 3/6 による地下水特性算出結果

計算のための 設定条件(*)	温度(°C)	10
	Eh (v)	+0.6
	log f <sub>CO2</sub> (bars)	-3.5
	cl <sup>-</sup> (mol/l)	1.0 E-3
算出結果	pH	9.6
	Na <sup>+</sup> (mol/l)	5.0 E-2
	K <sup>+</sup> (mol/l)	2.4 E-5
	Ca <sup>2+</sup> (mol/l)	8.8 E-6
	Mg <sup>2+</sup> (mol/l)	8.5 E-6
	Al(OH) <sub>4</sub> <sup>-</sup> (mol/l)	7.4 E-8
	H <sub>4</sub> SiO <sub>4</sub> (mol/l)	3.4 E-4
	Fe <sup>2+</sup> (mol/l)	2.3 E-6
	Fe <sup>3+</sup> (mol/l)	8.7 E-12
	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mol/l)	4.1 E-2

\* 地表近傍での温度と、酸化性帯水層の条件を想定し、値を設定した。

表 4-3 評価対象とする放射性元素のsynthetic な酸化性地下水に対する溶解度

元素名	溶解度制限固相	基本ケースでの溶解度 (mol/m <sup>3</sup> )	酸化性地下水に対する溶解度 (mol/m <sup>3</sup> )
Am	Am(OH)CO <sub>3</sub>	6.30 E-5	6.30 E-5
Np	Np(OH) <sub>4</sub> ; 準安定相	5.50 E-6	4.95 E-1
	NpO <sub>2</sub> ; 安定相	2.00 E-9	2.20 E-4
U	UO <sub>2(am)</sub> ; 準安定相	3.90 E-2	1
	UO <sub>2(cr)</sub> ; 安定相	3.90 E-7	1

#### 4.1 空間的に一様な環境条件の時間変化による影響

ここでは、時間的にのみ変化する環境条件の影響として、

- ・放射線分解による地下水peの変化、
- ・海水準変動によるニアフィールド水理の変化
- ・隆起・浸食による地下水peの変化

を例とした解析を行う。これらのいずれの事象についても、ニアフィールド内の環境条件変化は位置依存性も含むものと考えられるが、ここでは、前出の第一レベルとして、まず、空間的な一様性を仮定した解析により、ニアフィールド全域が同時に変化する場合の影響を検討することとする。なお、位置依存性をも含めた解析（レベル3）については、4.3にまとめる。

##### 4.1.1 放射線分解による地下水peの変化

###### (1) Shadow 関数の設定

このケースでは、ガラス固化体中の $\alpha$ 放射性核種による地下水の放射線分解で過酸化水素等が過剰に形成されることにより人工バリア内が酸化性雰囲気となることを想定して環境条件変化の溶解度への影響をShadow関数として表現する。溶解度の時間変化を表現するShadow関数としては、昨年度の研究において作成した、

$$\Psi_w = \exp\left(-\frac{W_{(t)}^2}{\left(\frac{w}{T}\right)^2}\right) \quad (1)$$

但し、

$$W_{(t)} = \frac{1}{\pi} \left\{ \left( \frac{\pi}{2} \right) + \arcsin \left( \sin \left( \frac{2\pi t}{T} + \frac{\pi}{2} \right) \right) \right\}$$

w; 変化のタイムスケール (yr)

T; 変化の周期 (yr)

を用いて、以下を仮定する。

$$c^*_{(t)} = (1 - \Psi_{(t)})c^*_{\text{red}} + \Psi_{(t)}c^*_{\text{ox}} \quad (2)$$

但し、

$c^*_{\text{red}}$ ; 基本ケース（還元性雰囲気）での溶解度

$c^*_{\text{ox}}$ ; 大気開放条件（酸化性雰囲気）での溶解度

また、放射線分解については、周期的に生じるものではなく、一過性と考えられることから、一回目の摂動のみを考え、以降は基本シナリオと同じ条件が継続するものと仮定した。パラメータは、放射線分解に主として寄与する最も短半減期の $\alpha$ 放射性核種である Am-241 の半減期に着目し、 $T=1000$ 、また、 $w$  は200、100、50、25の4ケースを想定した。各パラメータ値での環境条件変化をUの溶解度の時間的変化を例として図4.1.1-1に示す。

## (2) 解析条件

解析ケースとしては、核種移行に関して最も感度の大きいパラメータであった溶解・沈澱速度（3.参照）の速い場合と遅い場合、及びタイムスケールとの関係で影響を及ぼし得る分配係数が標準値である場合とその1/10である場合のそれぞれについて、変化のタイムスケールを（1）に述べた4種類を想定した合計16ケースについて解析を実施した。各ケースの条件設定を表4.1.1-1にまとめる。

表 4.1.1-1 放射線分解（時間変化のみ）についての計算ケース設定

ケース名	変動パラメータ値
H-1 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100), kd$ ; 標準値 $(T,w) =(1,000, 200)$ $(T,w) =(1,000, 100)$ $(T,w) =(1,000, 50)$ $(T,w) =(1,000, 25)$
H-2 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100), kd$ ; 標準値 x 0.1 $(T,w) =(1,000, 200)$ $(T,w) =(1,000, 100)$ $(T,w) =(1,000, 50)$ $(T,w) =(1,000, 25)$
H-3 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1), kd$ ; 標準値 $(T,w) =(1,000, 200)$ $(T,w) =(1,000, 100)$ $(T,w) =(1,000, 50)$ $(T,w) =(1,000, 25)$
H-4 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1), kd$ ; 標準値 x 0.1 $(T,w) =(1,000, 200)$ $(T,w) =(1,000, 100)$ $(T,w) =(1,000, 50)$ $(T,w) =(1,000, 25)$

### (3) 結果

各ケースについて算出した人工バリアからの核種放出率経時変化を図4.1.1-2にまとめる。最も影響が顕著に出ているのは、溶解・沈澱反応速度が大きくかつ分配係数も標準的なケースH-1であり、Np-237及びU-233の最大放出率はそれぞれ5桁及び1桁上昇している。これは、沈澱が速やかに進むためにガラス固化体近傍に存在する安定相及び準安定相の濃度が高く、これが放射性分解による酸化性雰囲気の出現のために一挙に溶け出すことが原因と考えられる。これに対して、溶解・沈澱反応速度の小さいケースH-3、及びH-4では、人工バリア中の沈澱物の量が限られておりかつ再溶解の速度も小さいために基本ケースからの放出率の増加は顕著ではない。また、H-1と同じ溶解・沈澱反応速度で分配係数を1/10としたケースH-2では、H-1に比べて核種移行が速く従ってやはり沈澱物の量が低減されるためにH-1ほど顕著な影響は見られない。

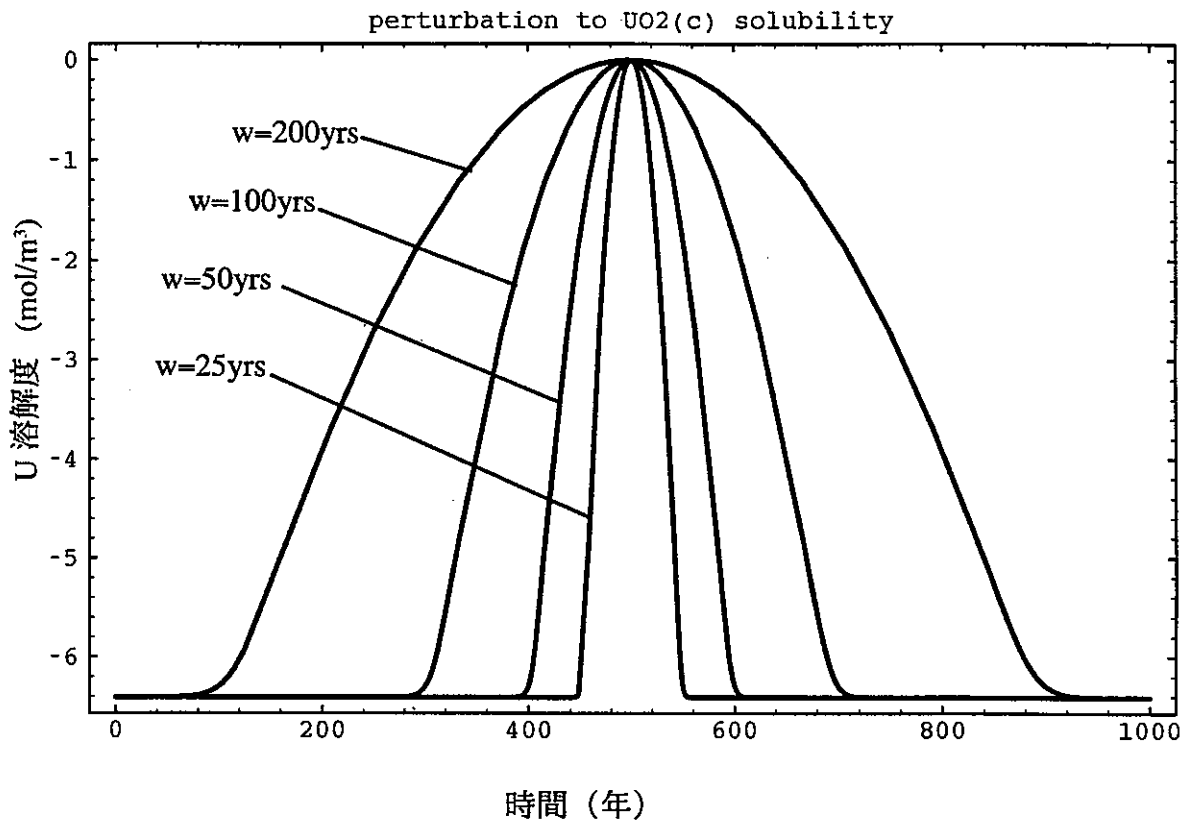


図 4.1.1-1 放射線分解による地下水  $pe$  の変化に対応した Shadow 関数

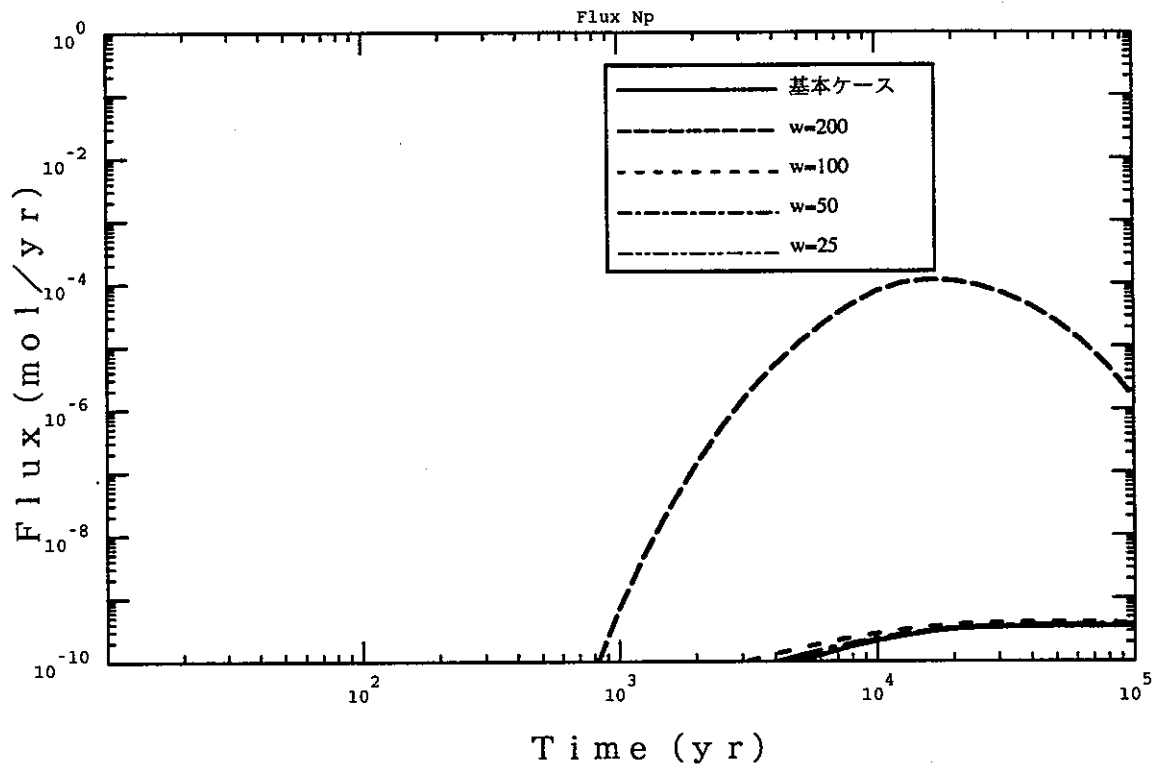


図 4.1.1-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
放射線分解ケース (時間変化)  $\mu = 10, 100$  (H-1)



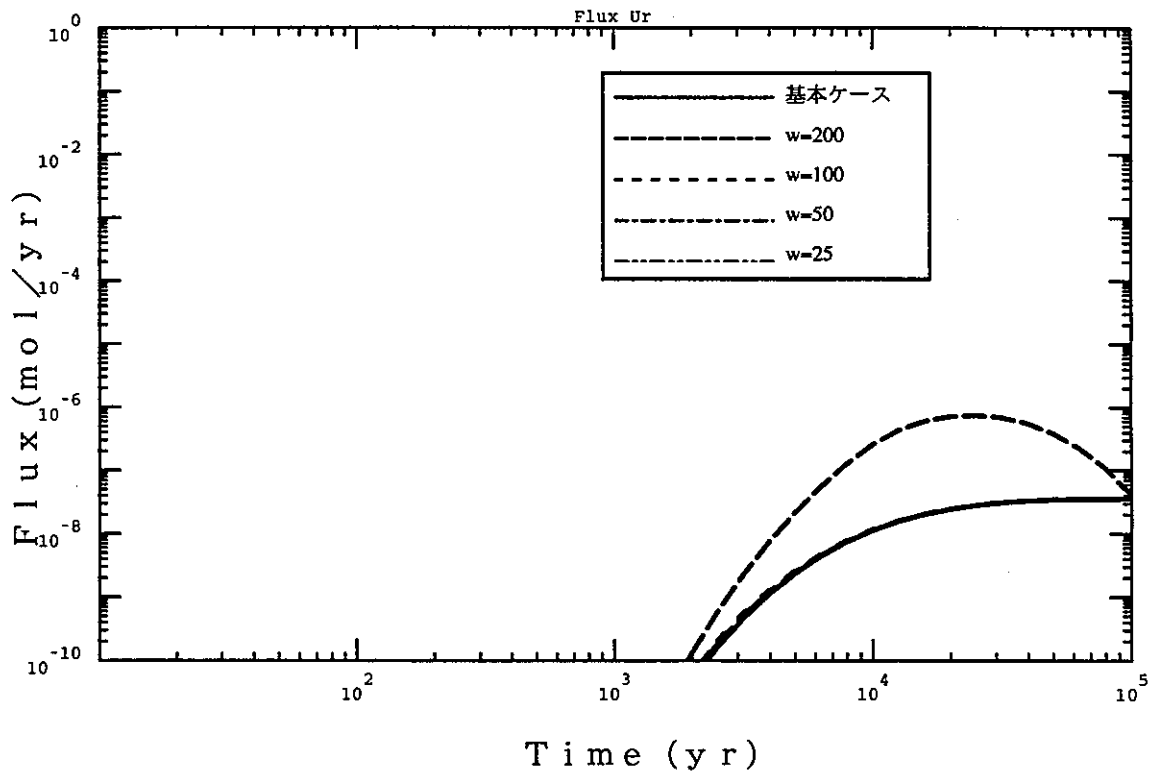


図 4.1.1-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
放射線分解ケース (時間変化)  $\mu = 10, 100$  (H-1)

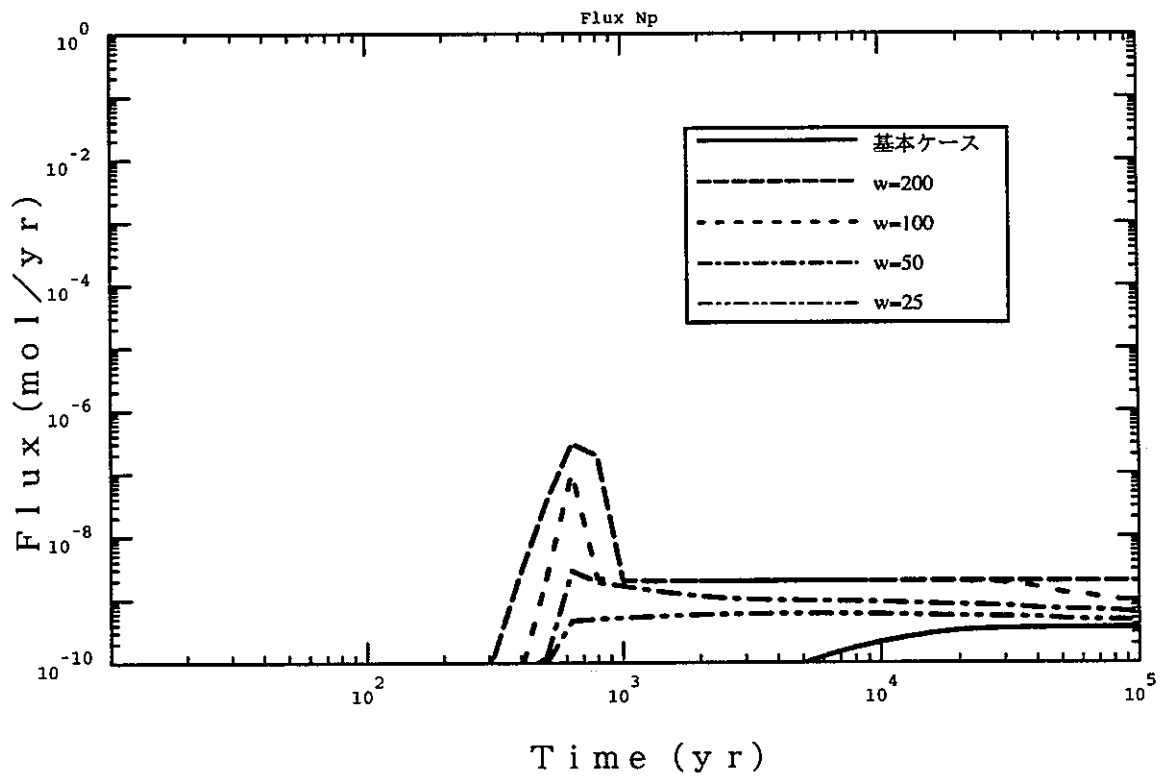


図 4.1.1-2 (3) 人工バリアからの核種放出率(Np)  
放射線分解ケース (時間変化)  $\mu = 10$ 、100 分配係数を 1/10 (H-2)

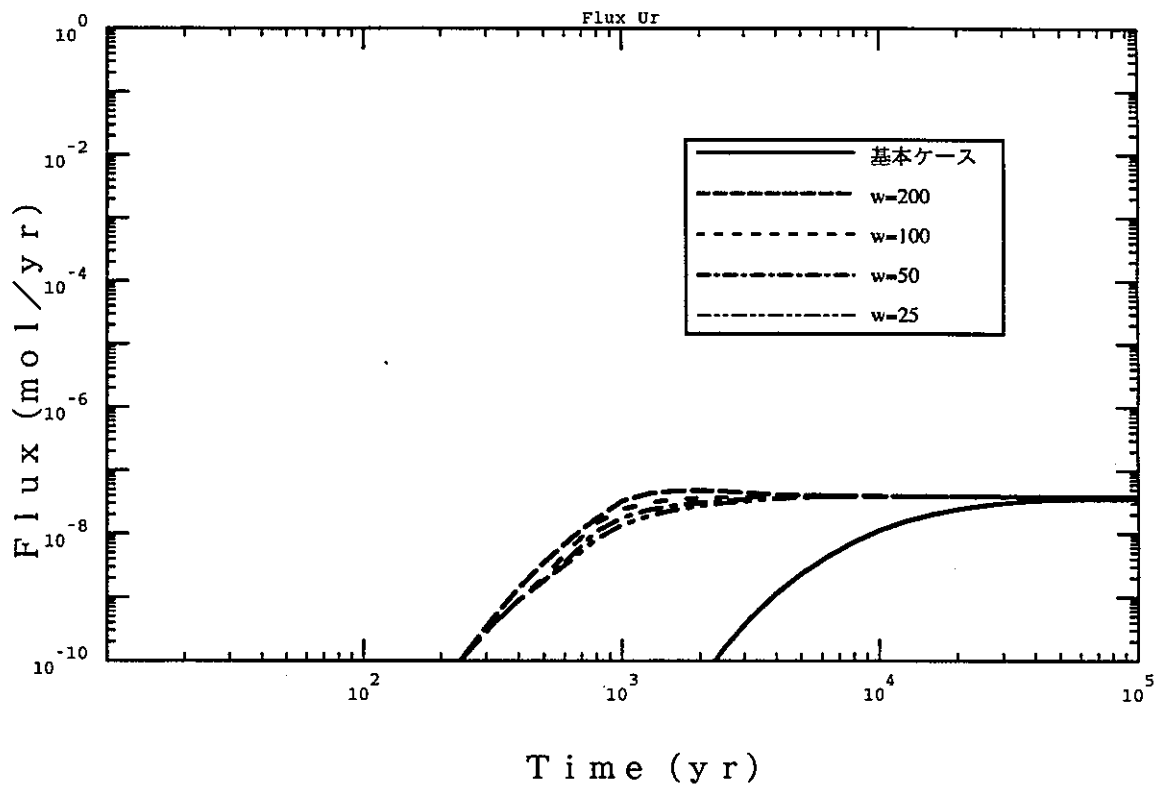


図 4.1.1-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
放射線分解ケース (時間変化)  $\mu = 10$ 、100 分配係数を 1/10 (H-2)

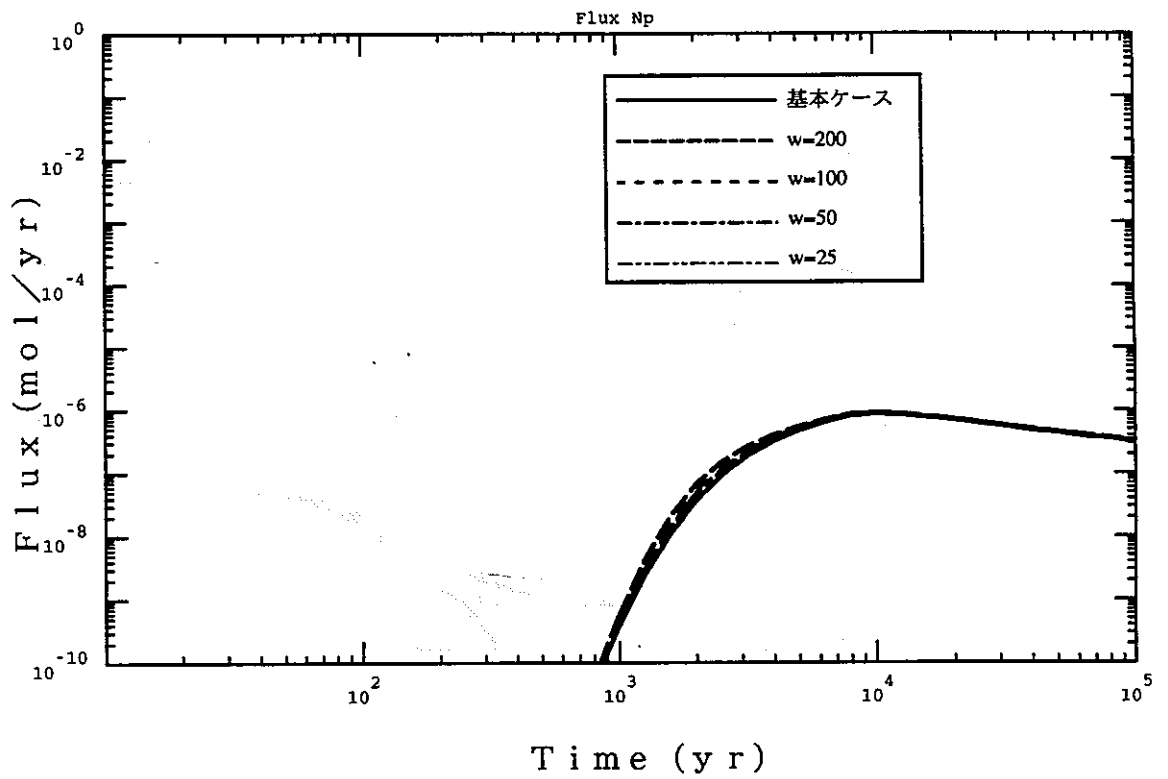


図 4.1.1-2 (5) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
放射線分解ケース  $\mu = 0.1, 1$  (H-3)

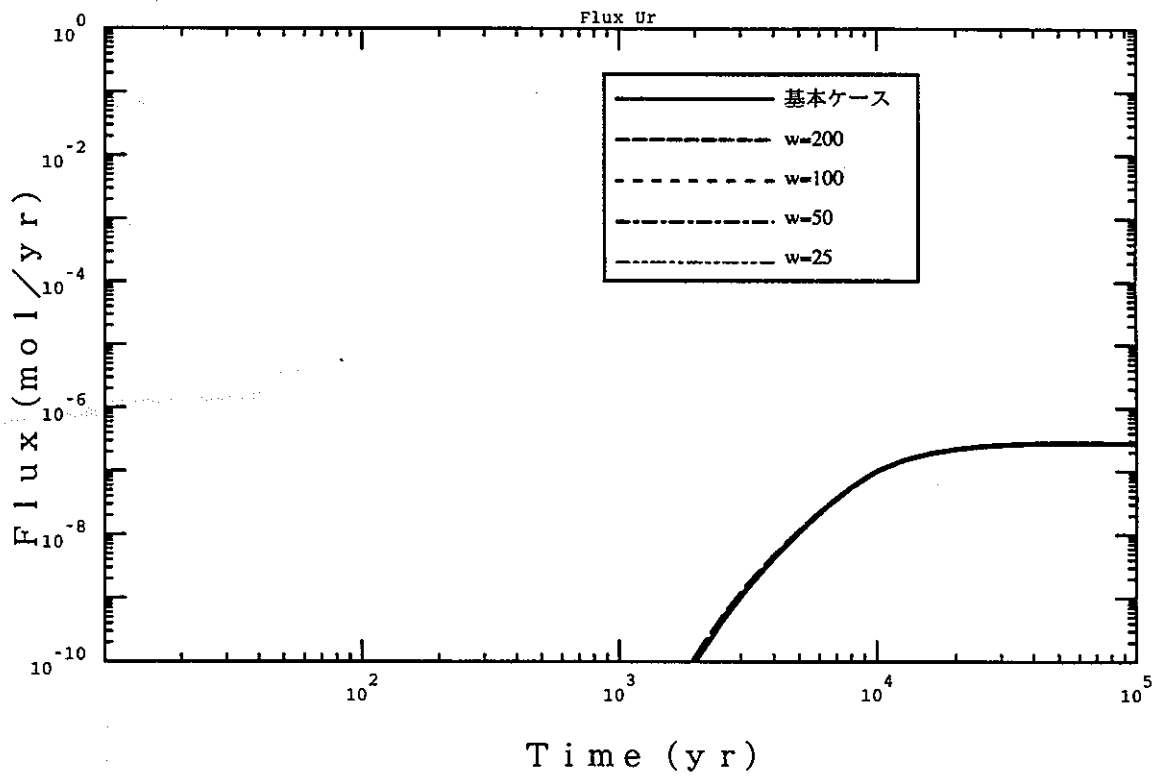


図 4.1.1-2 (6) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
放射線分解ケース  $\mu = 0.1, 1$  (H-3)

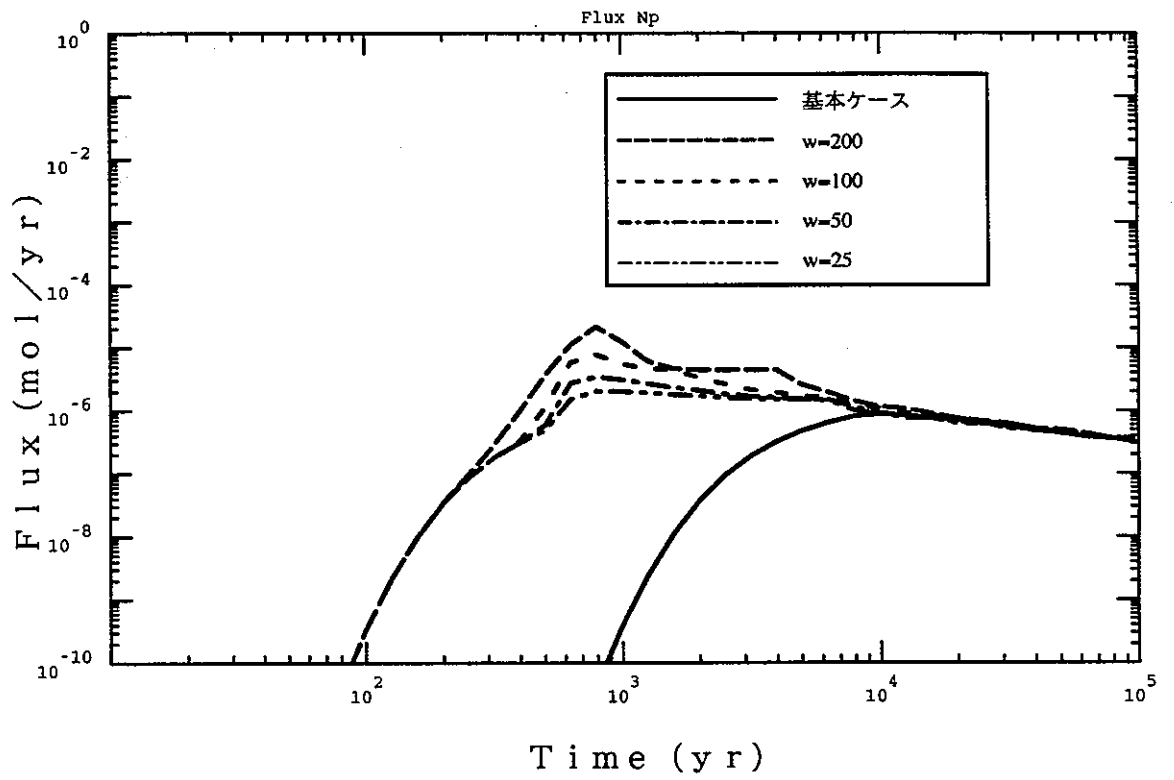


図 4.1.1-2 (7) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
放射線分解ケース  $\mu = 0.1$ 、1 分配係数を 1/10 (H-4)

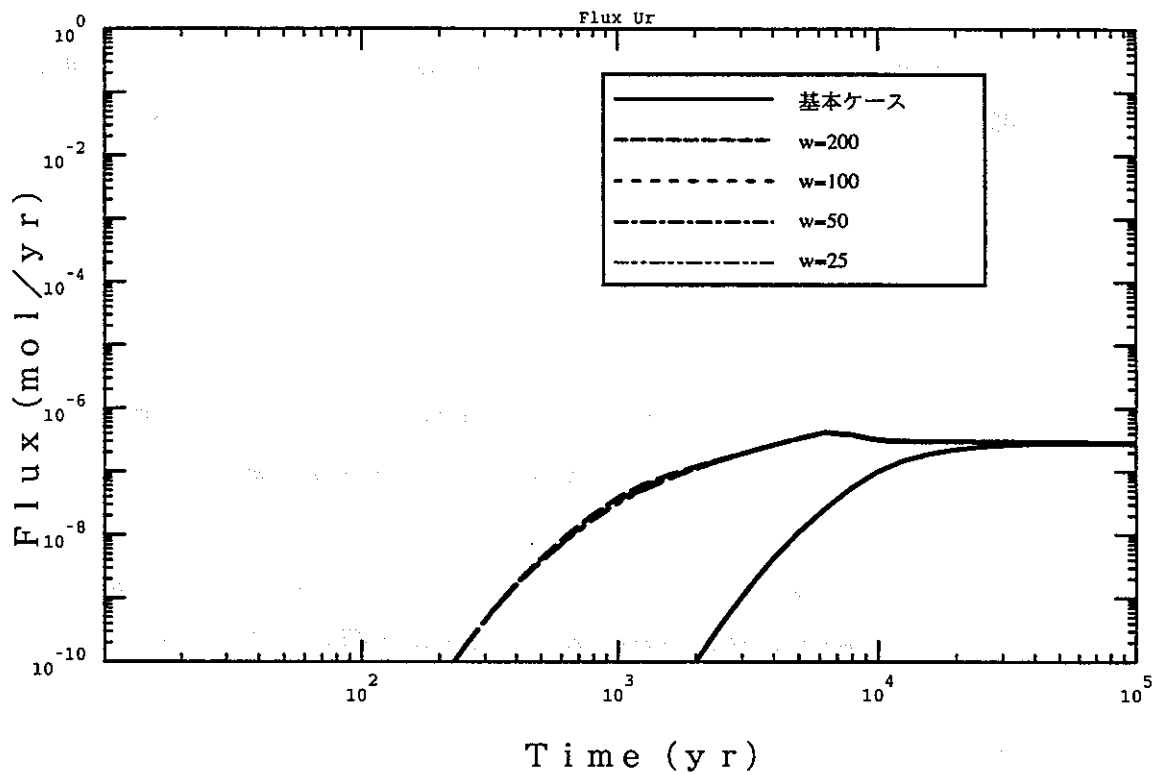


図 4.1.1-2 (8) 人工バリアからの核種放出率(U)  
放射線分解ケース  $\mu = 0.1$ 、 $\lambda$  分配係数を 1/10 (H-4)

## 4.1.2 海水準変動によるニアフィールド水理の変化

### (1) Shadow関数の設定

このケースでは、建設当初は内陸に位置していた処分場が、海水準上昇により塩淡水境界の海側へと変化することにより、ゆるみ域内の地下水流量（基本ケースでは $1\text{m}^3/\text{yr}$ ）が実質的には0となることを考え、この様な変化が気候変動と同じく約10万年周期で繰り返されることを想定して解析を行った。この様な変化を考えることにより、海水側に位置している間にゆるみ域に沈澱する核種が再び処分場が淡水側に到った際に比較的速やかに放出される可能性を定量的に検討することが可能となる。

ゆるみ域流量については、4.1.1と同じ波形関数 $\Psi(t)$ を用いて、以下の様な時間の関数として表現する。

$$q_{(t)} = (1 - \Psi_{(t)})q_{\text{inland}} + \Psi_{(t)}q_{\text{seabed}} \quad (3)$$

但し、

$q_{\text{inland}}$  ; 基本ケース（内陸側）でのゆるみ域流量

$q_{\text{seabed}}$  ; 海水側でのゆるみ域流量

パラメータとしては、 $T=10^5$ 年とし、 $w$ を20,000, 10,000, 5,000, 2,500の4ケース設定することとした。対応するゆるみ域流量の時間変化を図4.1.2-1に示す。

### (2) 解析条件

溶解・沈澱反応速度の大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1)で設定した4つの条件変化パターンを考えた合計8ケースの条件設定を表4.1.2-1にまとめる。



表 4.1.2-1 海水準変動についての計算ケース設定

ケース名	変動パラメータ値
I-1 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100)$ $(T,w)=(10^5, 20,000)$ $(T,w)=(10^5, 10,000)$ $(T,w)=(10^5, 5,000)$ $(T,w)=(10^5, 2,500)$
I-2 #1 #2 #3 #4	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1)$ $(T,w)=(10^5, 20,000)$ $(T,w)=(10^5, 10,000)$ $(T,w)=(10^5, 5,000)$ $(T,w)=(10^5, 2,500)$

### (3) 結果

(2) に述べた各ケースについて人工バリアからの核種放出率を算出した結果を、図 4.1.2-2にまとめる。(1) に述べた、処分場が内陸側に復帰する際の過渡的な放出率の増大はいずれのケースでも認められるが、有意なものではないことが図から明らかである。

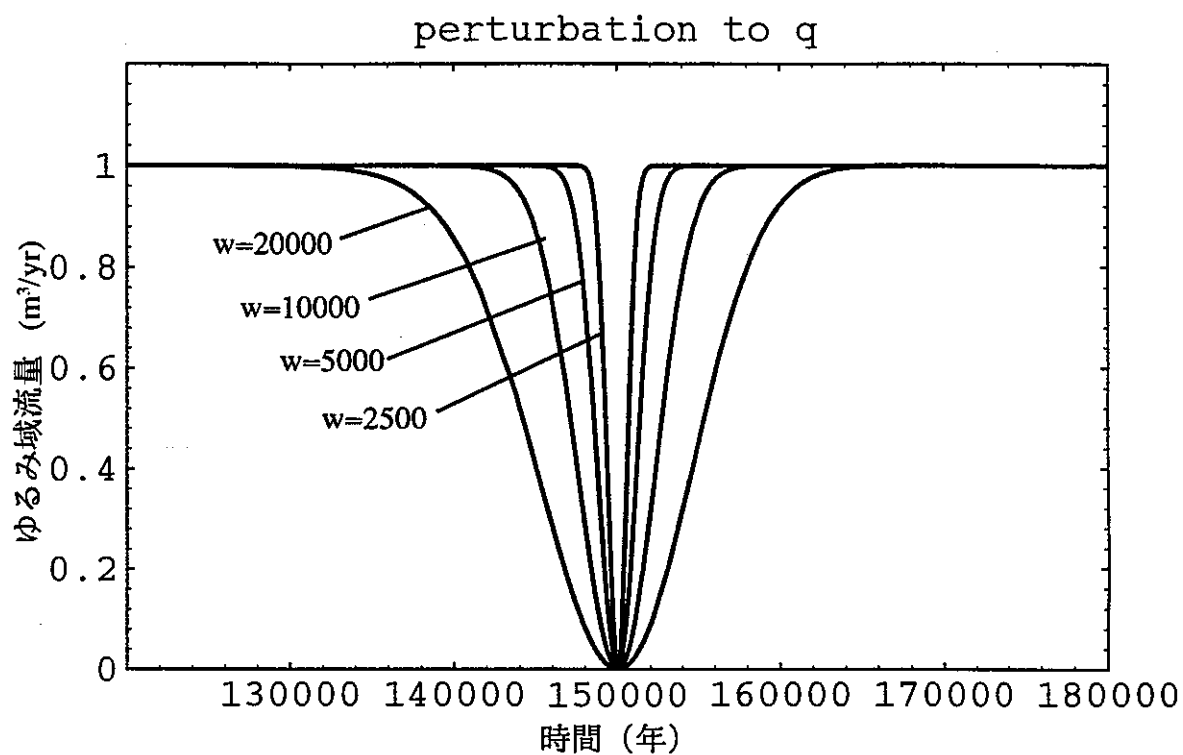


図 4.1.2-1 海水準変動によるニアフィールド水理の変化に対応した Shadow 関数

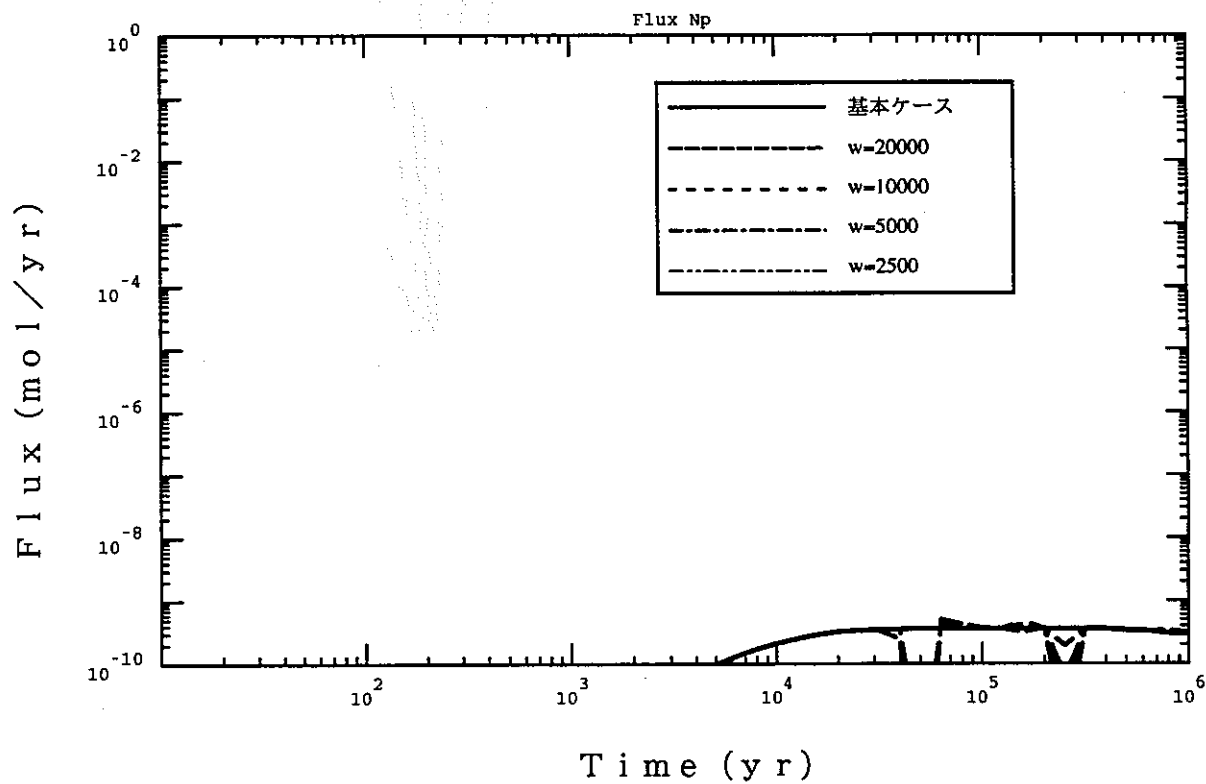


図4.1.2-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
 海水準変動ケース (時間変化)  $\mu = 10, 100$  (I-1)

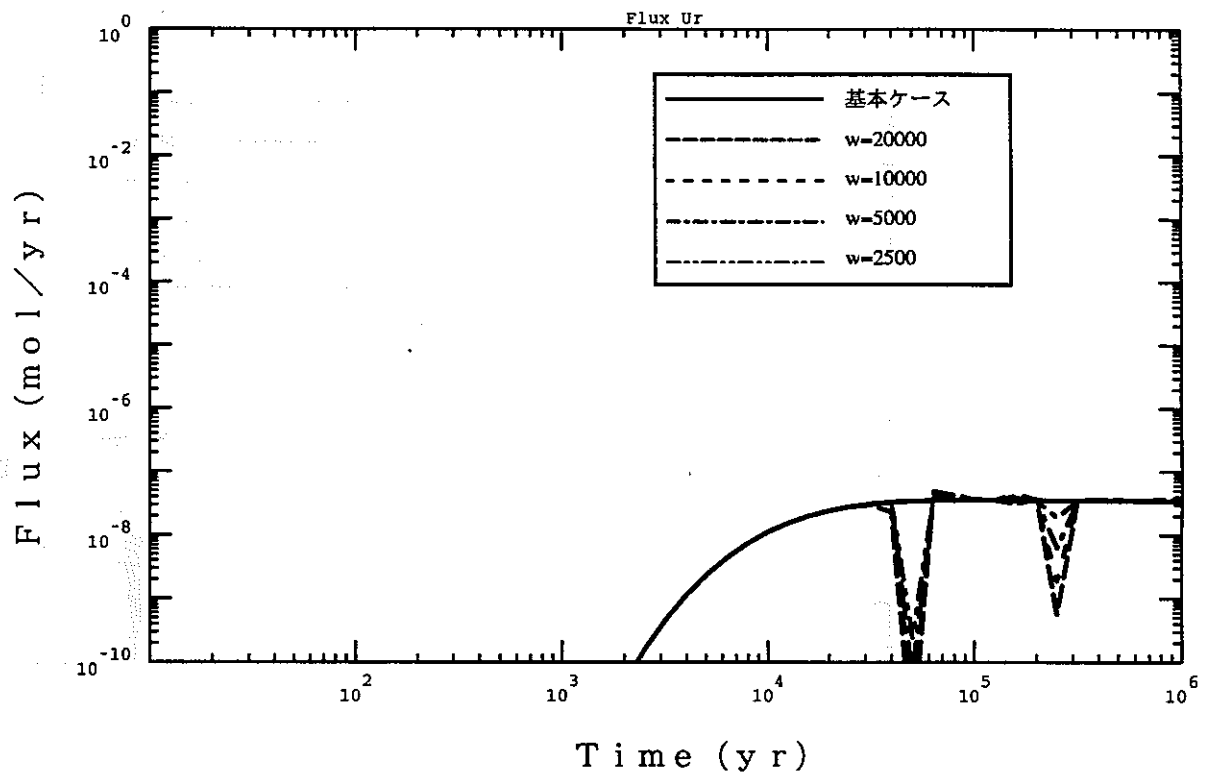


図4.1.2-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 海水準変動ケース (時間変化)  $\mu = 10, 100$  (I-1)

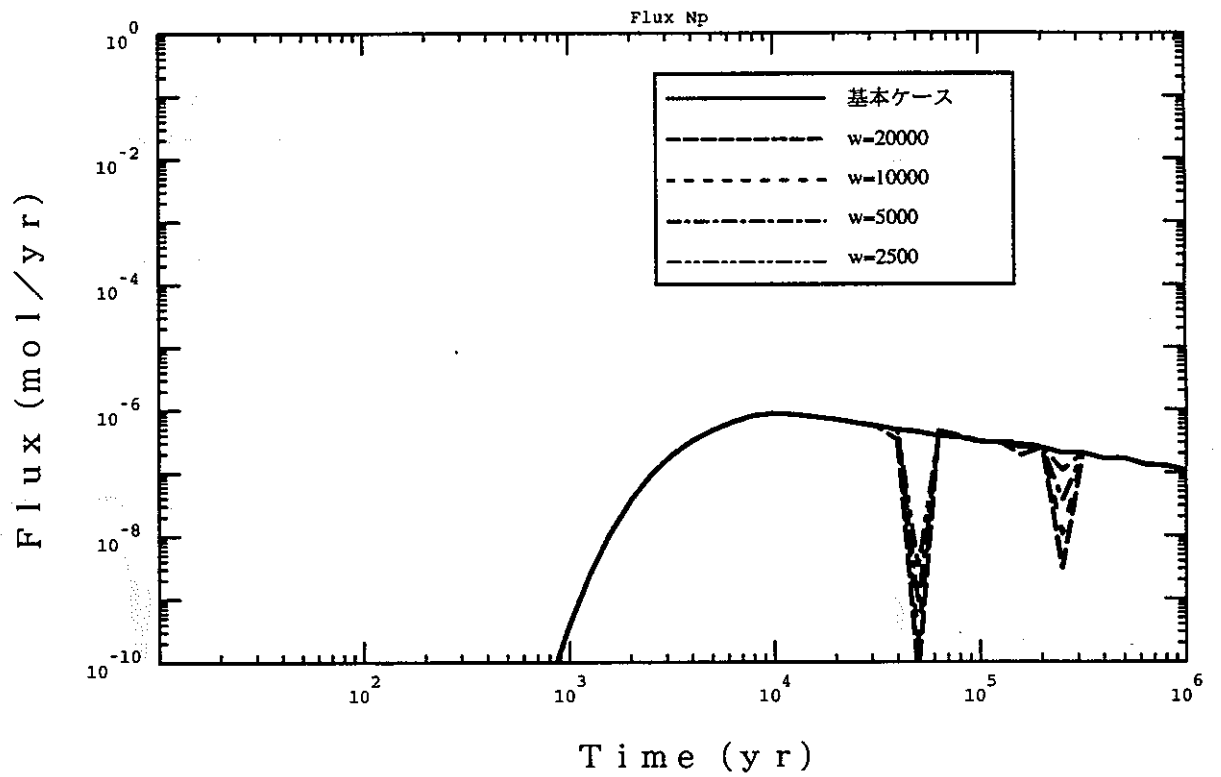


図4.1.2-2 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
海水準変動ケース (時間変化)  $\mu = 0.1, 1$  (I-2)

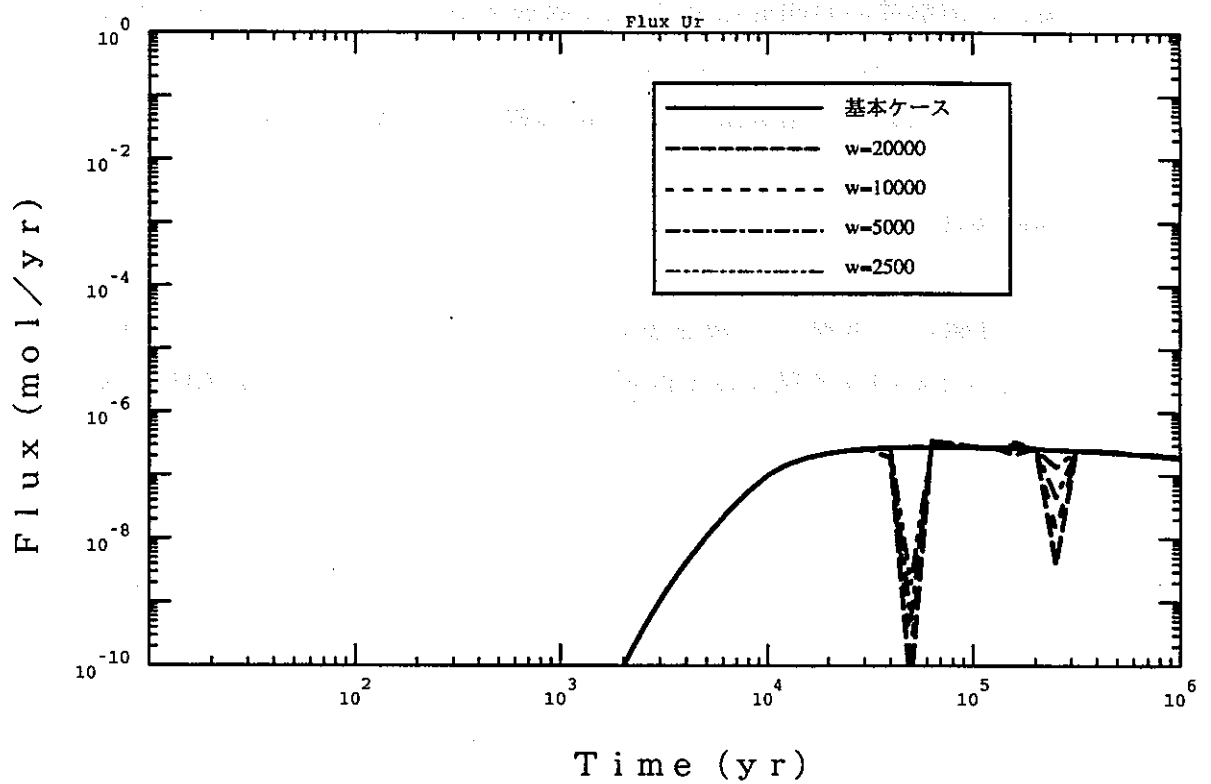


図4.1.2-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
海水準変動ケース (時間変化)  $\mu = 0.1, 1$  (I-2)

### 4.1.3 隆起・浸食による地下水peの変化

#### (1) Shadow 関数の設定

ここでは、隆起・浸食によりサイトが徐々に削剥され、地表に漸近する可能性を想定し、地表近傍の帯水層に到った段階から徐々にニアフィールド地下水が酸化性へと変化した場合の、核種放出率への影響について解析を行った。隆起・浸食速度としては、Shimizu 等 [Shimizu et al., 1992] を参考として  $0.1\text{m}/1000\text{yrs}$  と設定する。つまり1000万年間で1000mの隆起が生じ、隆起分が全て浸食されるという状況を想定することとなる。

この場合の溶解度の時間変化を(2)式で表現することとし、パラメータとして  $T=2 \times 10^7$  yrs、また、 $w$  を  $10^6$ ,  $5 \times 10^5$ ,  $2.5 \times 10^5$ ,  $1.25 \times 10^5$ ,  $6.25 \times 10^4$ ,  $3.125 \times 10^5$  という6ケースを考えたこととした。対応する溶解度のShadow関数 ( $U$  の例) を図4.1.3-1に示す。

#### (2) 解析条件

4.1.2と同様に、溶解・沈澱速度の大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1)に述べた $w$ の6種類の値を仮定した合計12ケースの解析条件を表4.1.3-1にまとめる。



表 4.1.3-1 隆起・浸食についての計算ケース設定

ケース名	変動パラメータ値
J-1 #1 #2 #3 #4 #5 #6	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 10^6)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 5 \times 10^5)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 2.5 \times 10^5)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 1.25 \times 10^5)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 6.25 \times 10^4)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 3.125 \times 10^4)$
J-2 #1 #2 #3 #4 #5 #6	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 10^6)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 5 \times 10^5)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 2.5 \times 10^5)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 1.25 \times 10^5)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 6.25 \times 10^4)$ $(T,w)=(2 \times 10^7, 3.125 \times 10^4)$

### (3) 結果

結果を、図4.1.3-2に示す。Np-237については、いずれの場合にも核種放出率のピークが $10^{-6}$  mol/yrに達しており、溶解・沈澱反応速度の大きい基本ケースA-1と比べると約4桁の上昇が認められる。隆起・浸食の場合には、処分場が地表に接近する時期での天然バリア性能は長寿命核種について大きく期待できないことから、人工バリアからの核種放出率に基づく被ばく線量の概算を行って見た。ここで、固化体あたり $10^{-6}$  mol/yrという核種放出率は、処分数量40000本を考えると、総放出率として $2.4 \times 10^7$  Bq/yrに相当し、例えばこれを標準的な河川水量 $3.8 \times 10^8$  m<sup>3</sup>/yrで希釈することを想定すると、この時の飲料水摂取による被ばく線量は、 $1.8 \times 10^{-4}$  mSv/yr程度となる。

また、処分場が地表に露出した場合のNp、及びUの残存量が、1年以内に全て地表水に溶出したと仮定すると、対応する飲料水摂取による被ばく線量は、1000万年後において図4.1.3-3に示すものとなる。Np-237については $w > 2.5 \times 10^5$ 、U-233については $w > 1.25 \times 10^5$ といった緩やかな環境変化である場合には露出時に残存する放射性核種による被ばくも目安線量の0.01 mSv/yrと同程度以下であるが、酸化性地下水への変化が地表近傍数10mから急激に始まる場合には無視し得ない被ばくにつながる量の放射性核種が残留する可能性があるということが出来る。

以上の、時間変化のみを考慮した各ケースについての感度解析の結果を図4.1-1にまとめる。

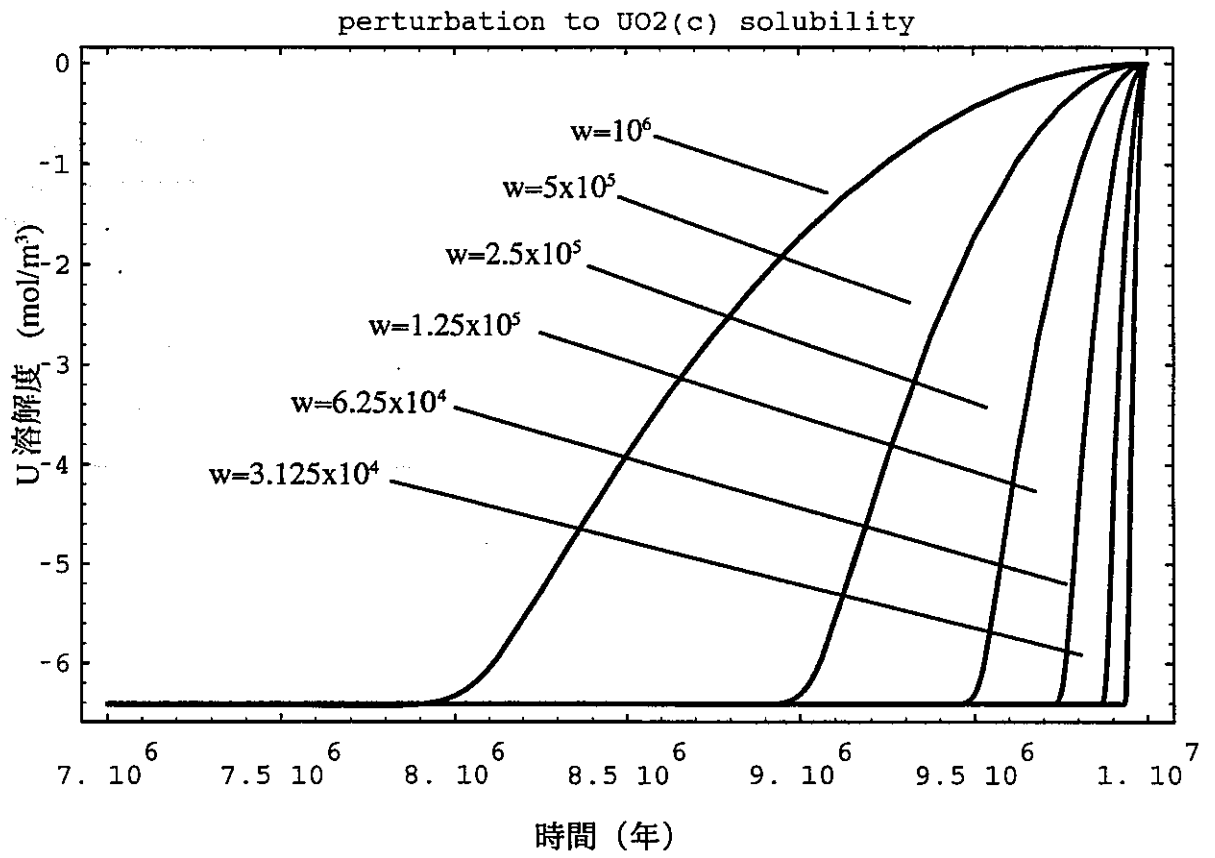


図 4.1.3-1 隆起・浸食による地下水  $p_e$  の変化に対応した Shadow 関数

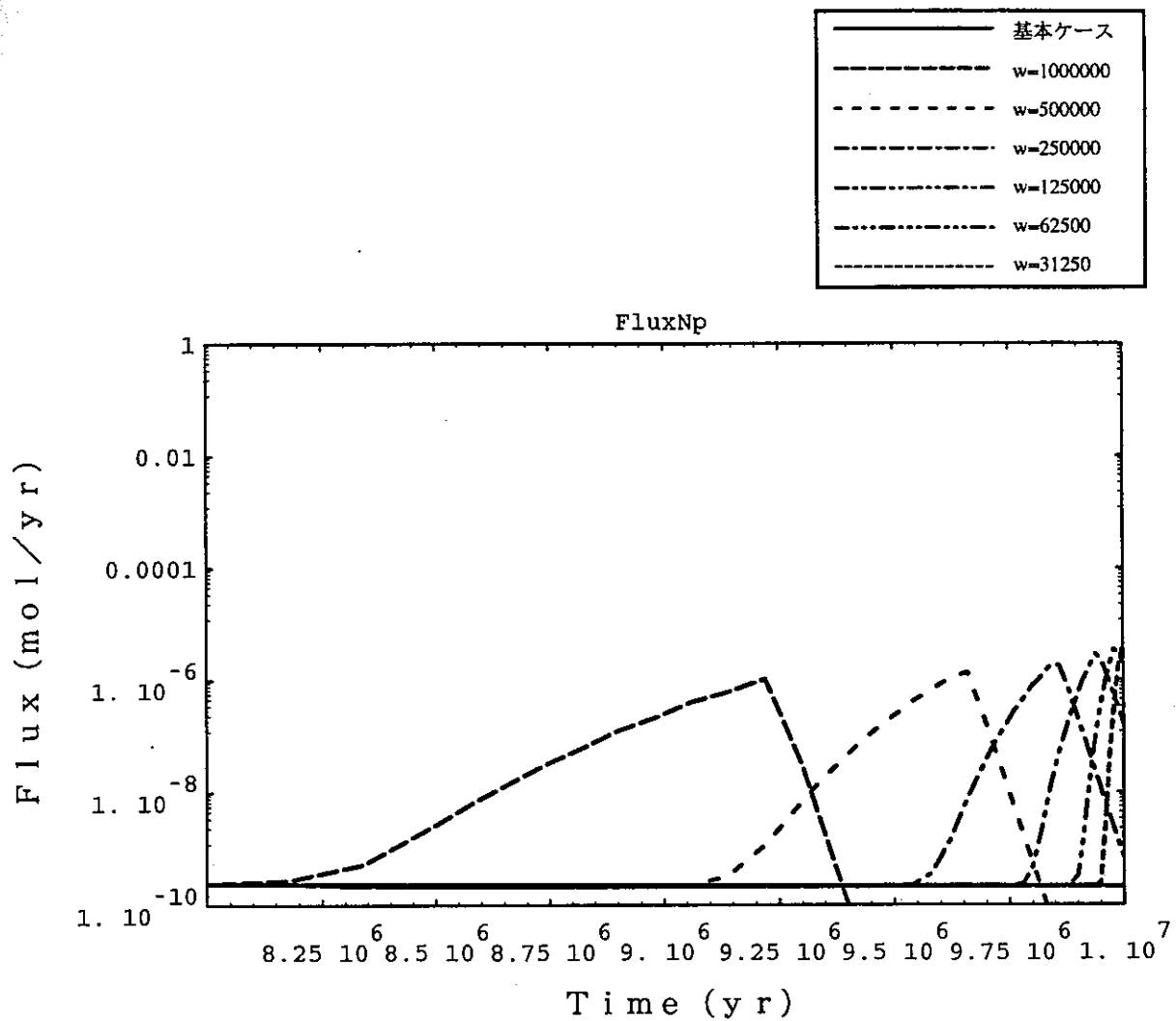


図4.1.3-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)

隆起・浸食ケース (時間変化)  $\mu = 10, 100$  (J-1)

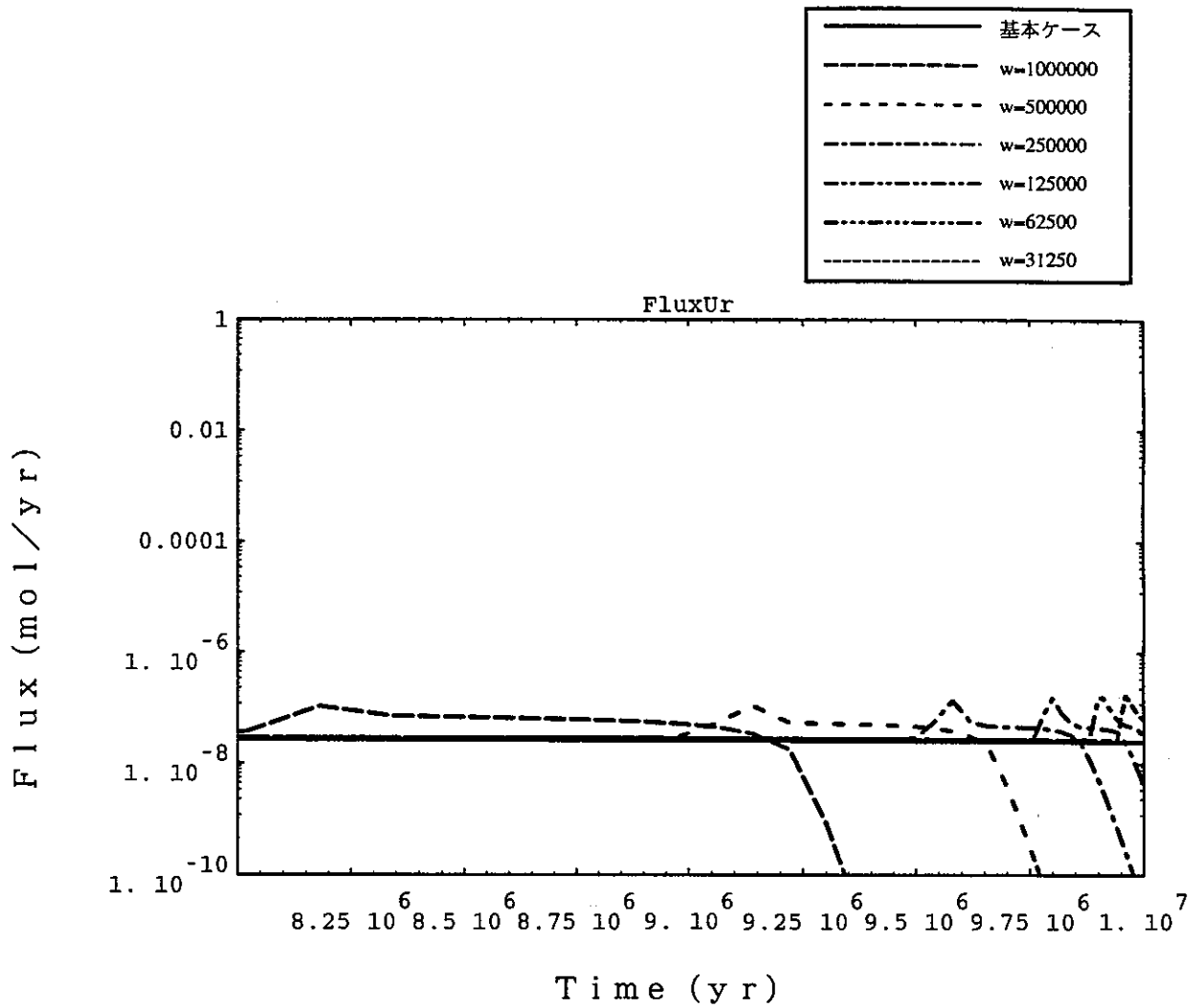


図4.1.3-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)

隆起・浸食ケース (時間変化)  $\mu = 10, 100$  (J-1)

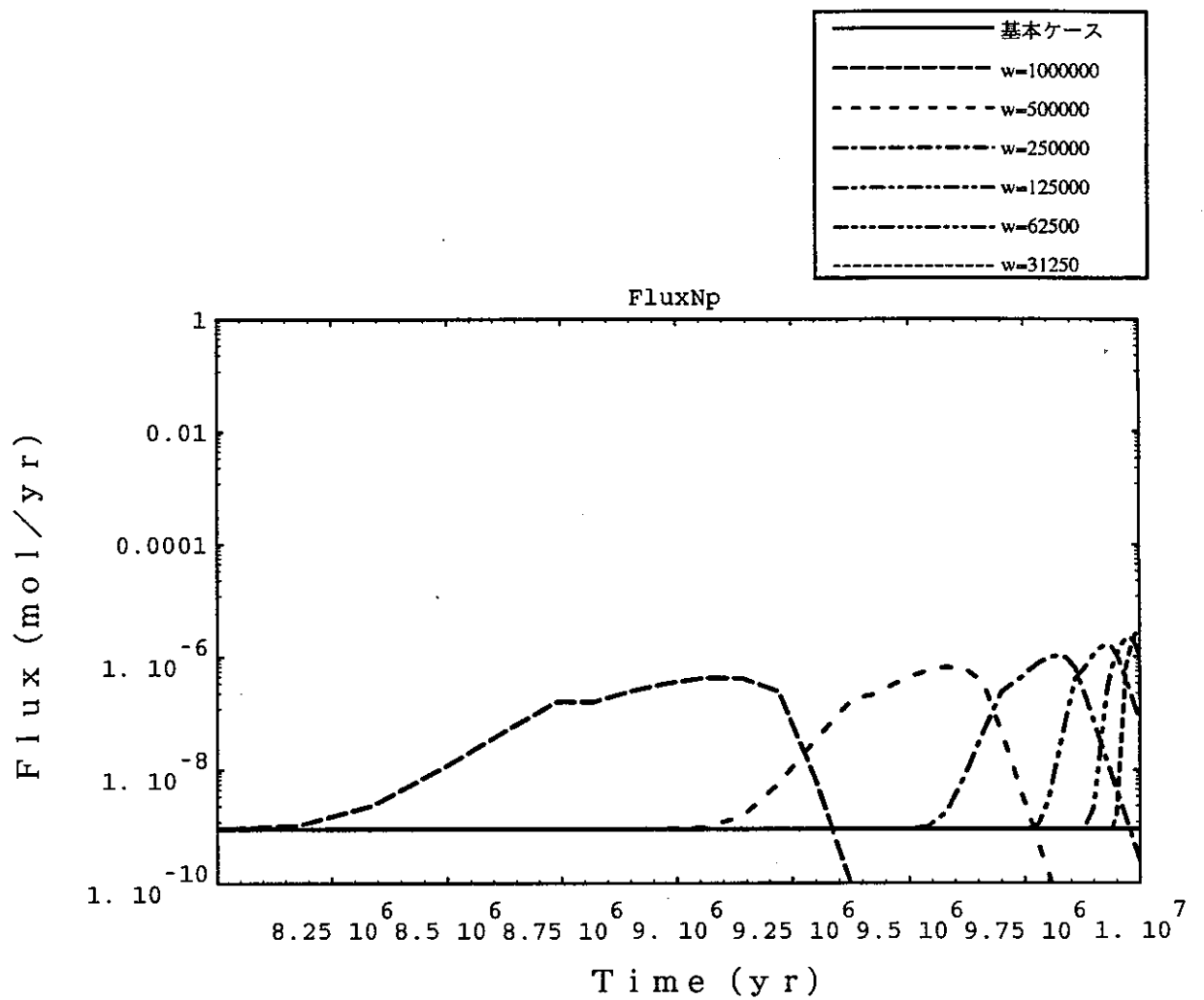


図 4.1.3-2 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Np)

隆起・浸食ケース (時間変化)  $\mu = 0.1, 1$  (J-2)

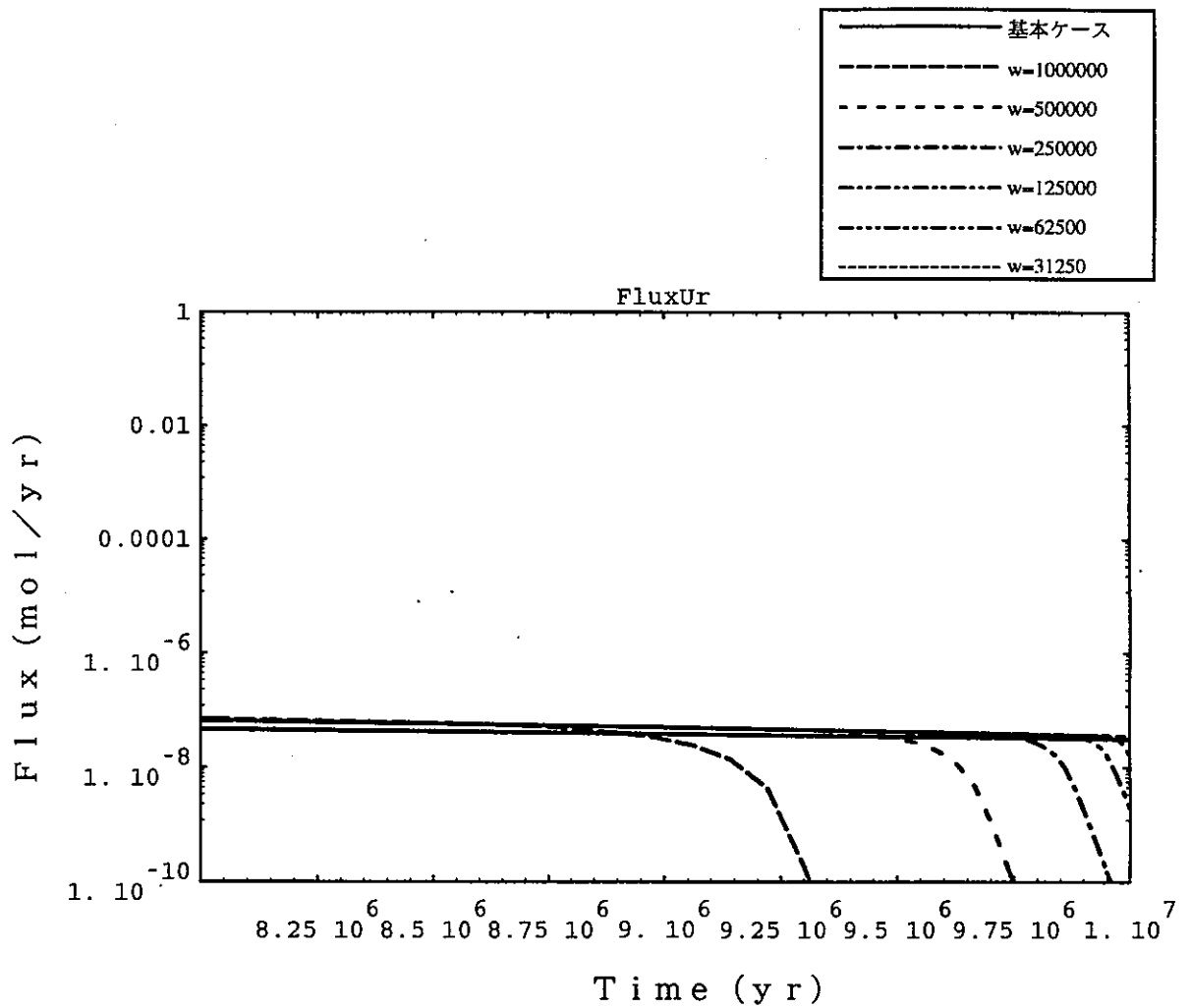


図 4.1.3-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
隆起・浸食ケース (時間変化)  $\mu = 0.1, 1$  (J-2)

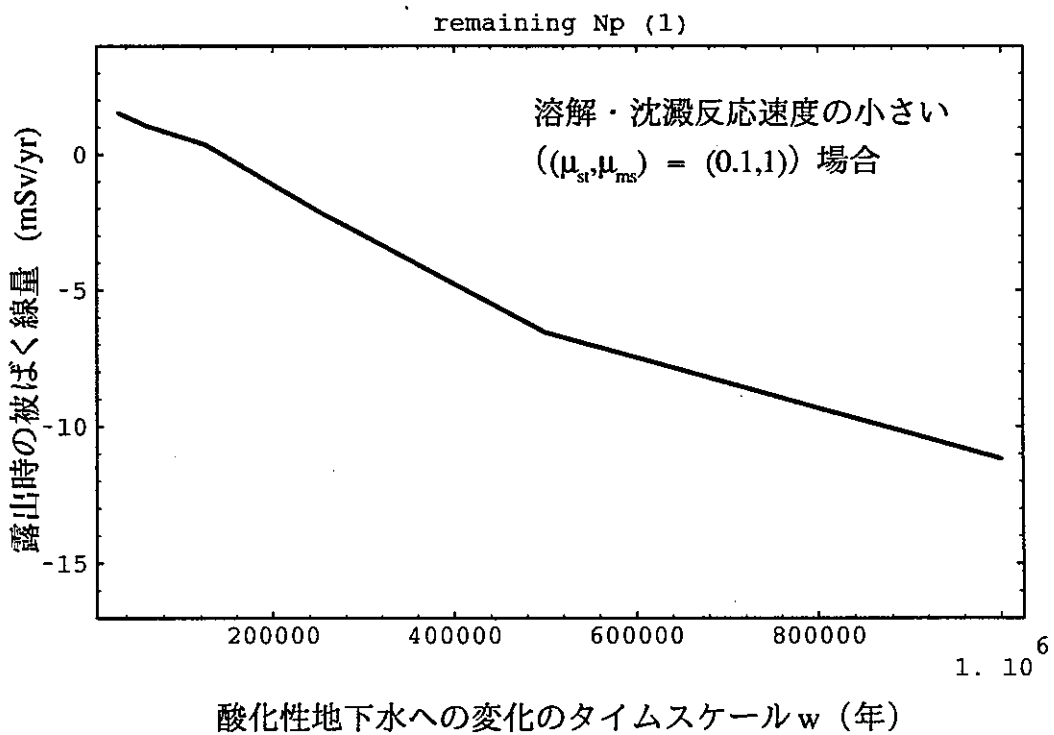
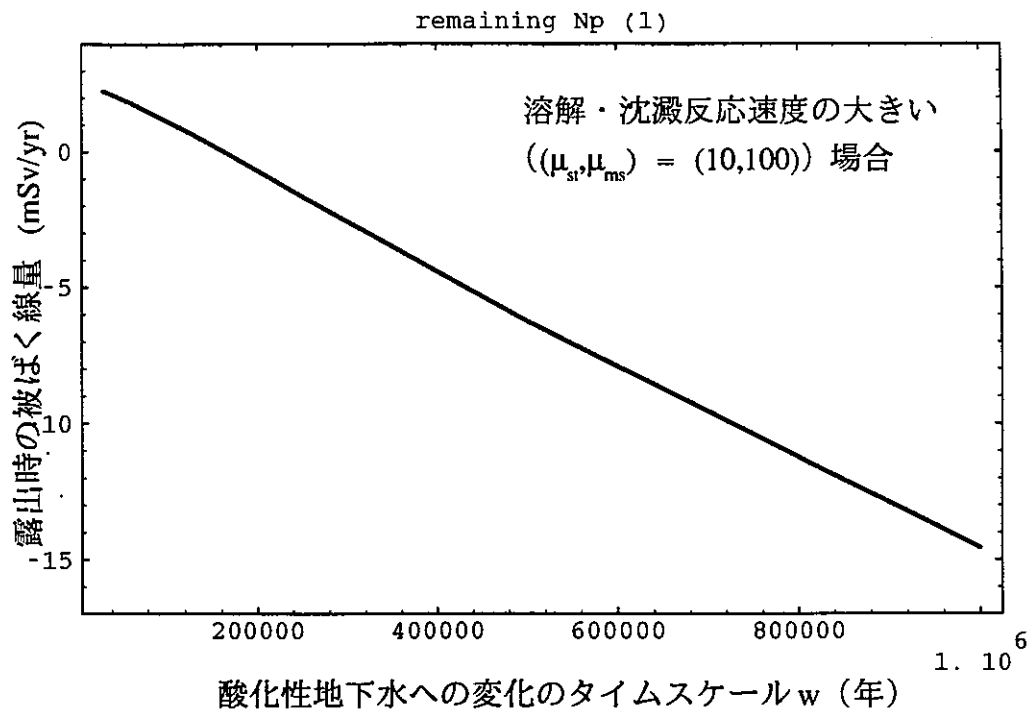


図 4.1.3-3 (1) 隆起・浸食による処分場露出時に残存する Np-237 が 1 年以内に溶出し標準的な河川流量で希釈された場合の飲料水摂取による被ばく線量



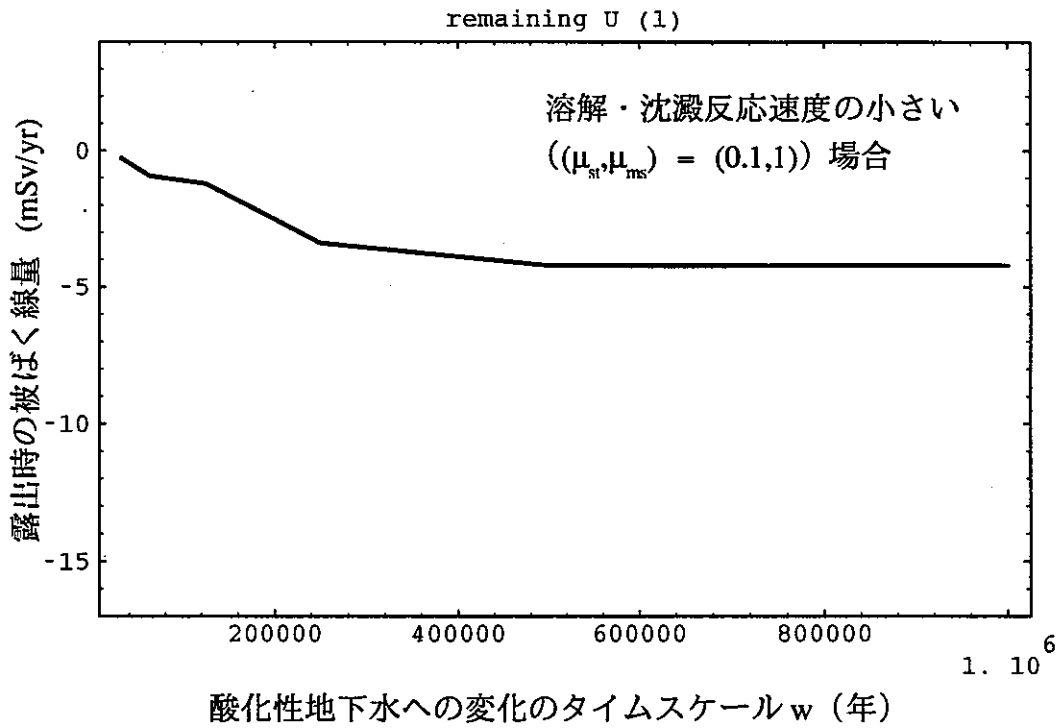
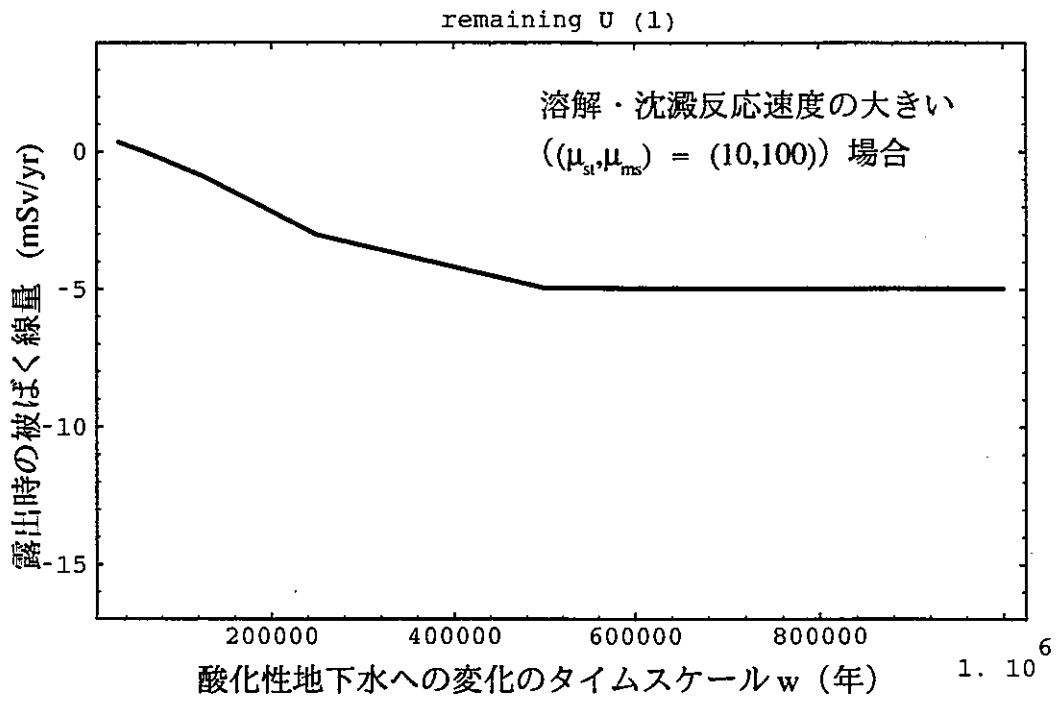


図 4.1.3-3 (2) 隆起・浸食による処分場露出時に残存する U-233 が 1 年以内に溶出し標準的な河川流量で希釈された場合の飲料水摂取による被ばく線量

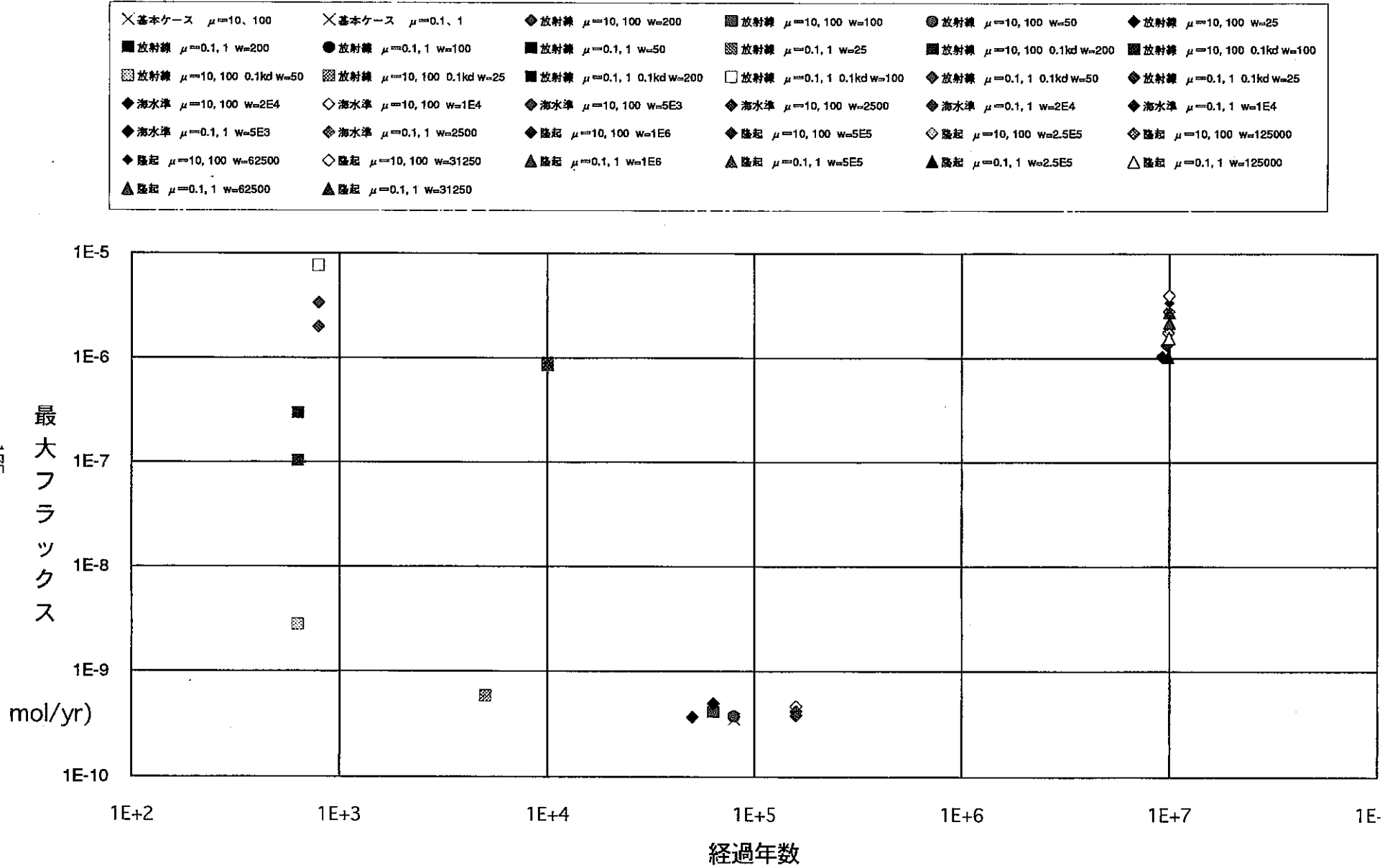


図4.1-1(1) 空間的に一様な環境条件の時間変化の影響に関する感度解析結果のまとめ(Np-237)

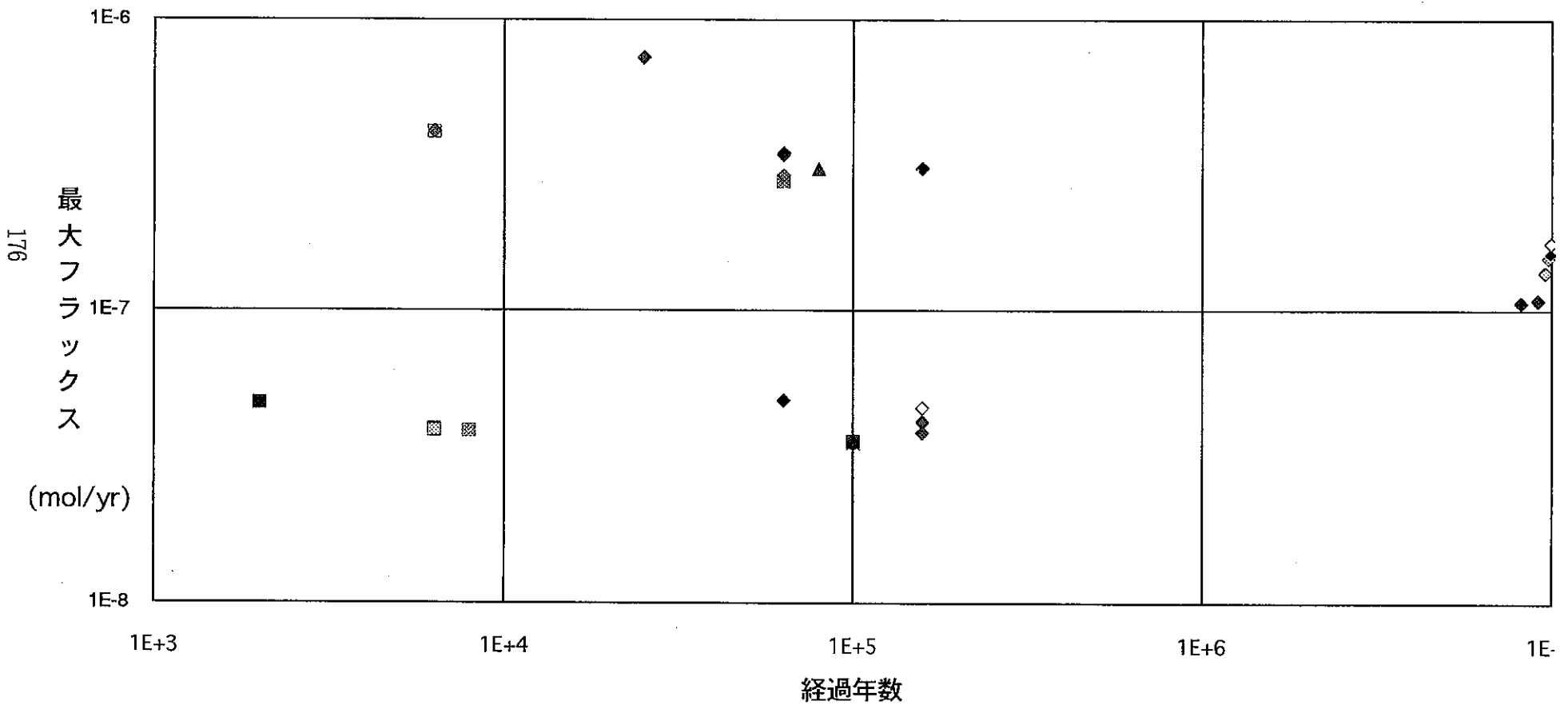


図4.1-1(2) 空間的に一様な環境条件の時間変化の影響に関する感度解析結果のまとめ(U-233)

## 4.2 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響

### 4.2.1 酸化性地下水浸入による地下水pe 変化の影響

ここでは、環境条件変化の位置依存性に着目し、4.1とは逆に、時間変化を無視して性能評価パラメータ特に溶解度を位置の関数として表現した場合の解析（レベル2）を行った。想定する事象としては、ニアフィールドにおける新たな逆断層の形成により、地表近傍の酸化性の水が断層活動時の引っ張りのelastic reboundにより地下深部に引き込まれる seismic pumping [Muir Wood, 1993]を考えることとした。

#### (1) Shadow 関数の設定

このケースでは、ゆるみ域内の地下水は外部から導かれた酸化性の水によって完全に置換され、酸素が人工バリアに向けて内側へと拡散により浸入していくことを想定する。この際、オーバーパック部分に存在する腐食生成物は二価鉄イオンを大量に含み、従って大きな還元容量をもつことから、リザーバ部分の酸化還元電位は基本シナリオと同じ強還元性に保たれるものと仮定した。

以上の仮定から、位置依存の溶解度関数  $c_{(r)}^*$  を、リザーバ中での還元性条件での溶解度とゆるみ域中での酸化性条件での溶解度との間を内挿する Shadow 関数として、以下の様に表現した。

$$c_{(r)}^* = \left\{ 1 - \left( \frac{r - r_{\text{reservoir}}}{r_{\text{buffer}} - r_{\text{reservoir}}} \right) \right\}^n c_{\text{reducing}}^* + \left( \frac{r - r_{\text{reservoir}}}{r_{\text{buffer}} - r_{\text{reservoir}}} \right)^n c_{\text{oxidizing}}^* \quad (4)$$

但し、

$r_{\text{reservoir}}$  ; リザーバー半径

$r_{\text{buffer}}$  ; 緩衝材外半径

$n$  ; 定数

ここで、 $n$  は内挿関数の凹凸をコントロールするパラメータであり、浸入する酸素は緩衝材中の黄鉄鉱との反応によっても消費される（つまりシンクタムを持つ）ために凹である必要があるため、 $n$  として1以上の数値を設定した（1、10、100 の3種類）。図

4.2.1-1に、 $c^*_{(r)}$ のShadow関数としての表現（Uの例）を示す。図から明らかな様に、 $n$ が大きい程凹の程度は強くなり、つまり、酸化性地下水の影響が緩衝材外表面近傍に限られることとなる。

## （2）解析条件

ここでも、溶解・沈澱速度が大きい場合と小さい場合のそれぞれについて（1）に述べた3種類の $n$ の値を考えた合計6ケースについて解析を行うこととした。各ケースについての解析条件の設定を表4.2.1-1にまとめる。

表4.2.1-1 酸化性地下水浸入（位置依存性）についての計算ケースの設定

ケース名	変動パラメータ値
K-1 #1 #2 #3	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100)$ n=1 n=10 n=100
K-2 #1 #2 #3	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1)$ n=1 n=10 n=100

### (3) 結果

各ケースについて算出した人工バリアからの核種放出率時間変化を図4.2.1-2に示す。核種放出率への影響は、U-233 については顕著ではないが、Np-237 では溶解・沈澱反応速度の大きいケースK-1 で3桁程度の上昇、反応速度の小さいケースK-2 で約1桁の上昇となっている。また、 $n=100$ とした場合でも核種放出率の上昇は大きく、酸化性地下水の影響が緩衝材の外表面の直近に限られる場合でも核種挙動に重要な影響を及ぼし得ることがわかる。

以上の感度解析の結果を、図4.2-1にまとめる。

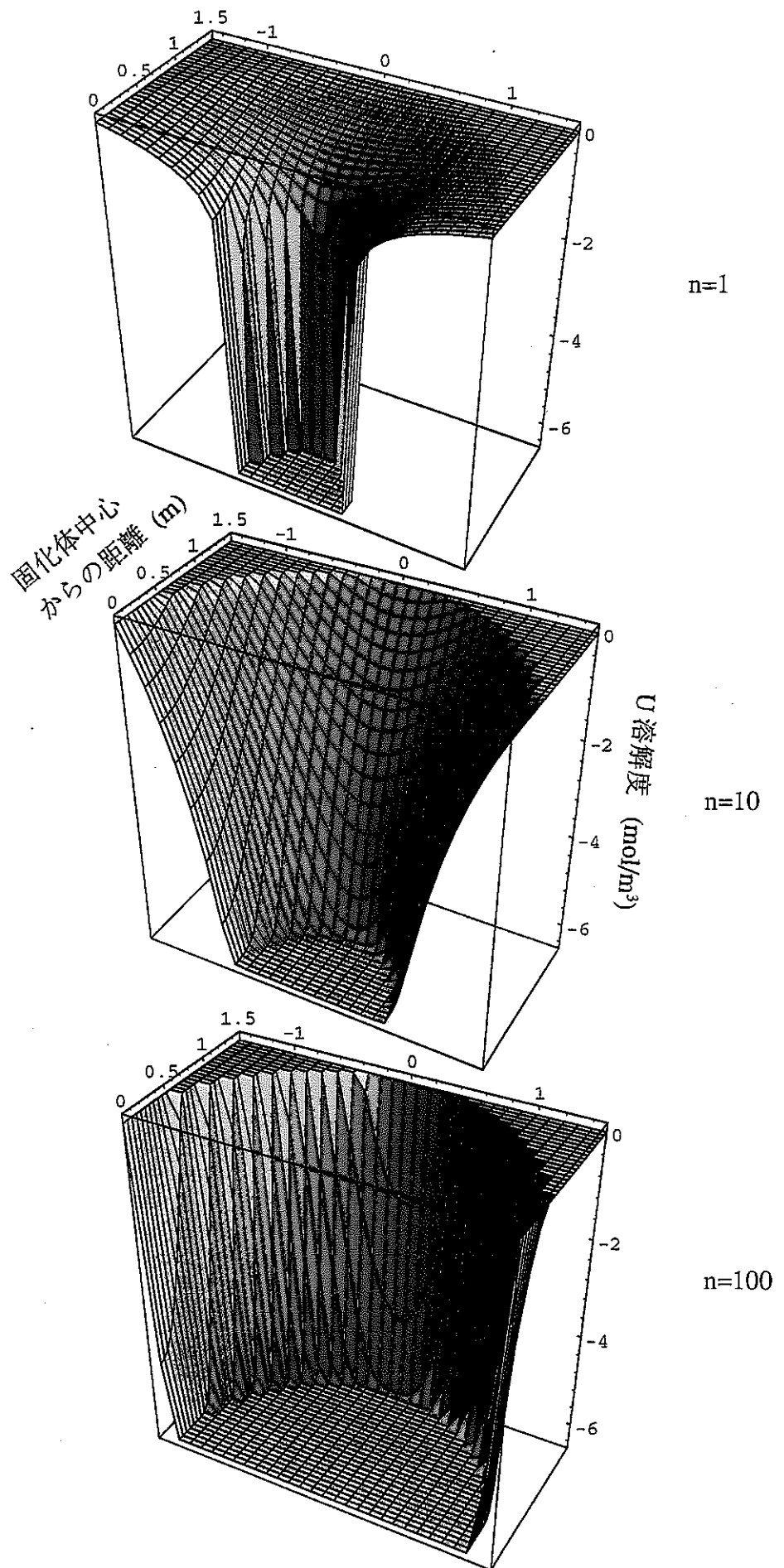


図 4.2.1-1 酸化性地下水の浸入による地下水  $pe$  の変化に対応した Shadow 関数



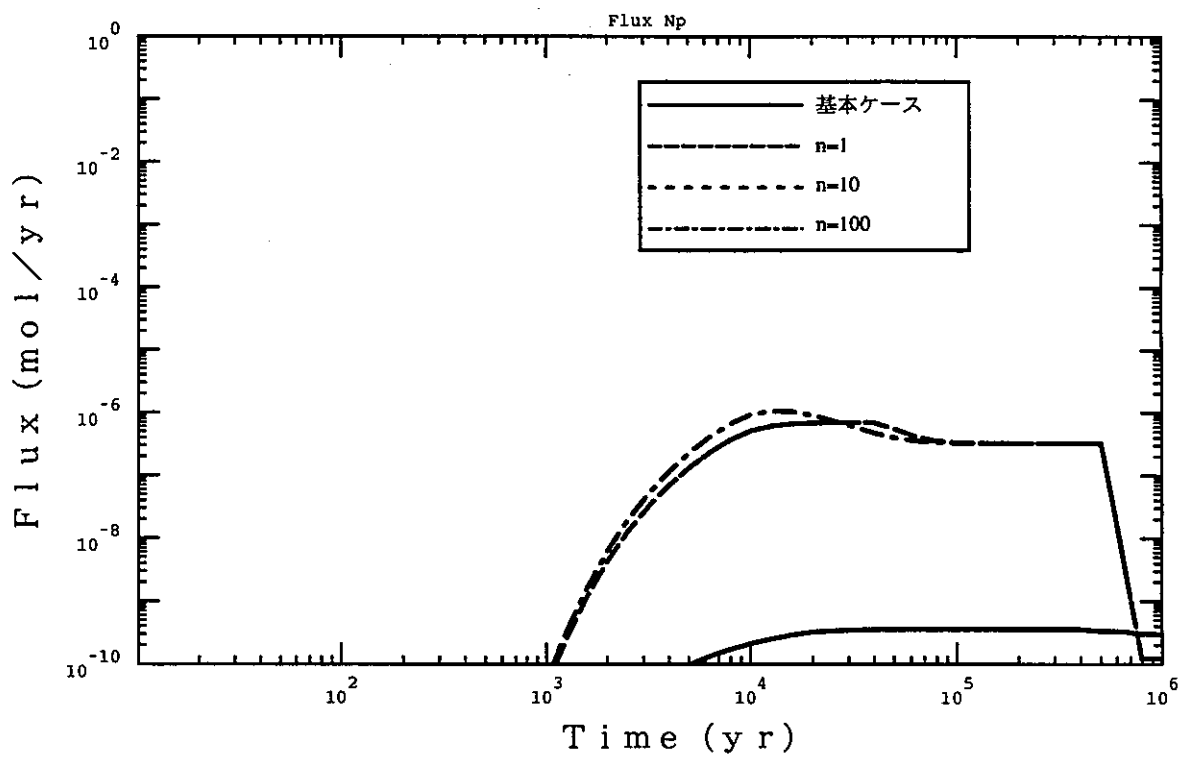


図4.2.1-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
酸化性地下水浸入 (空間依存)  $\mu = 10, 100$  (K-1)

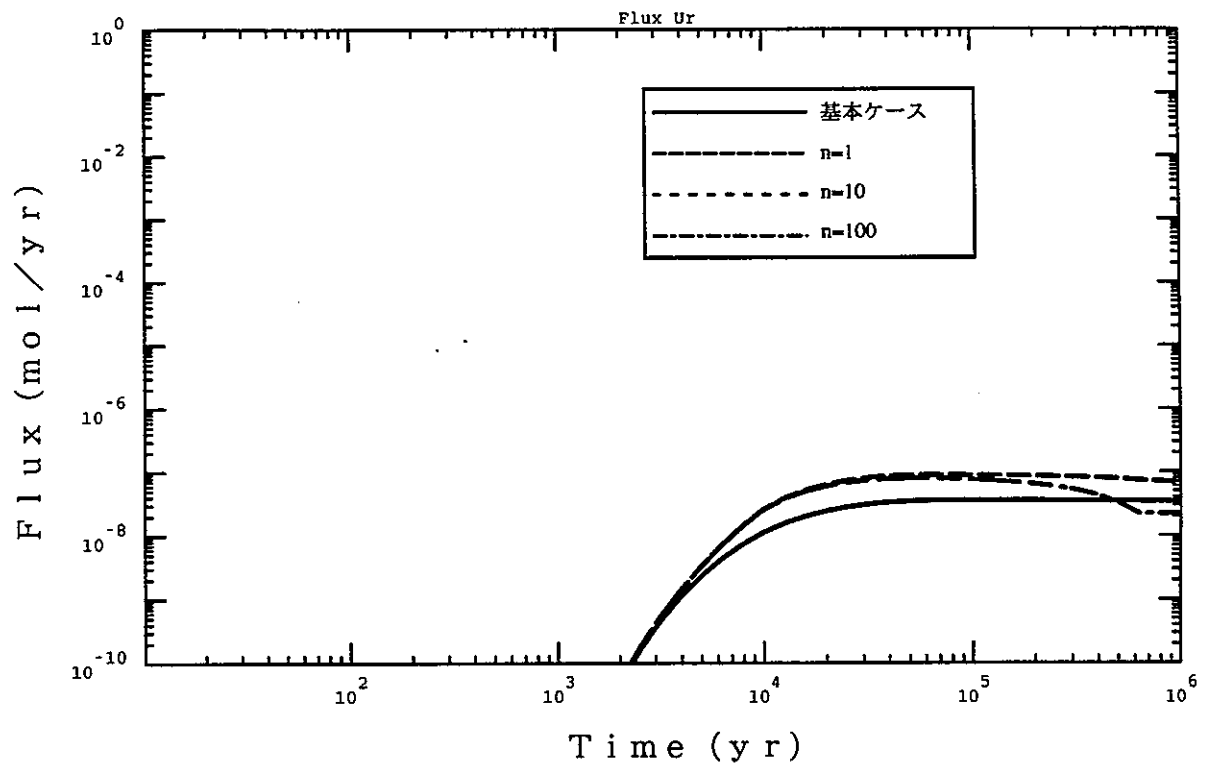


図 4.2.1-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
酸化性地下水浸入 (空間依存)  $\mu = 10, 100$  (K-1)

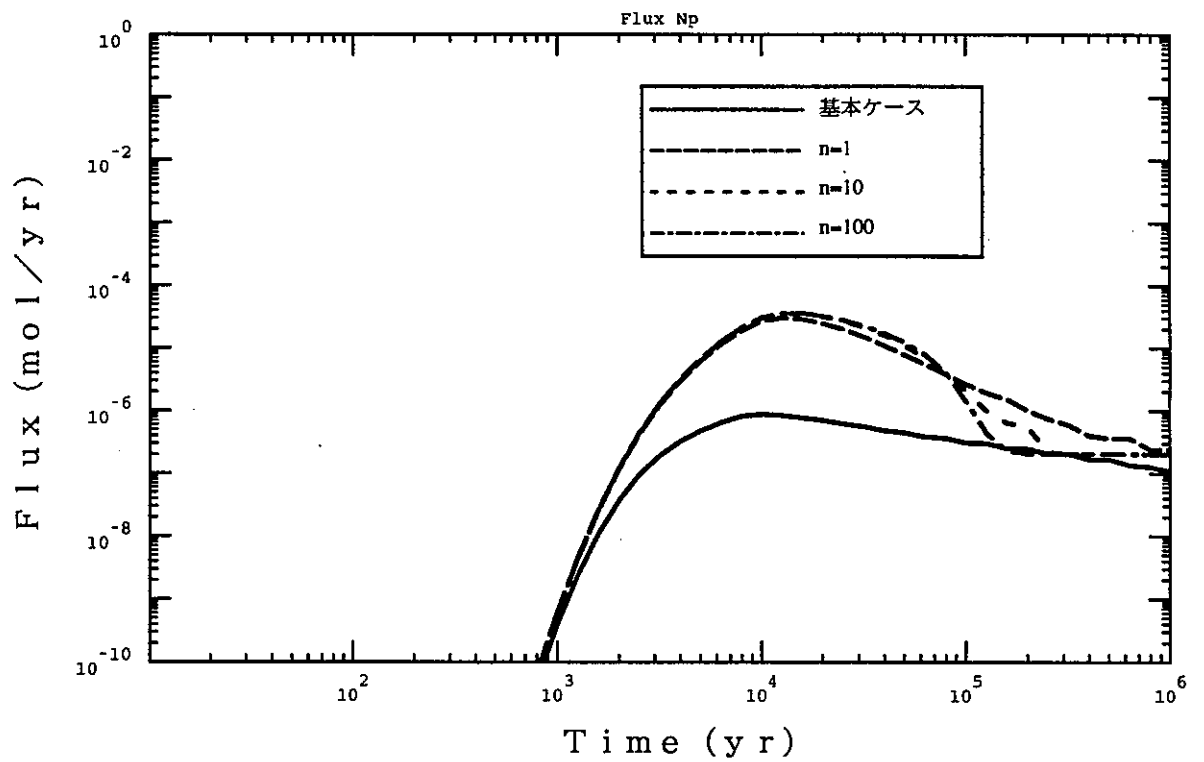


図 4.2.1-2 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
酸化性地下水浸入 (空間依存)  $\mu = 0.1, 1$  (K-2)

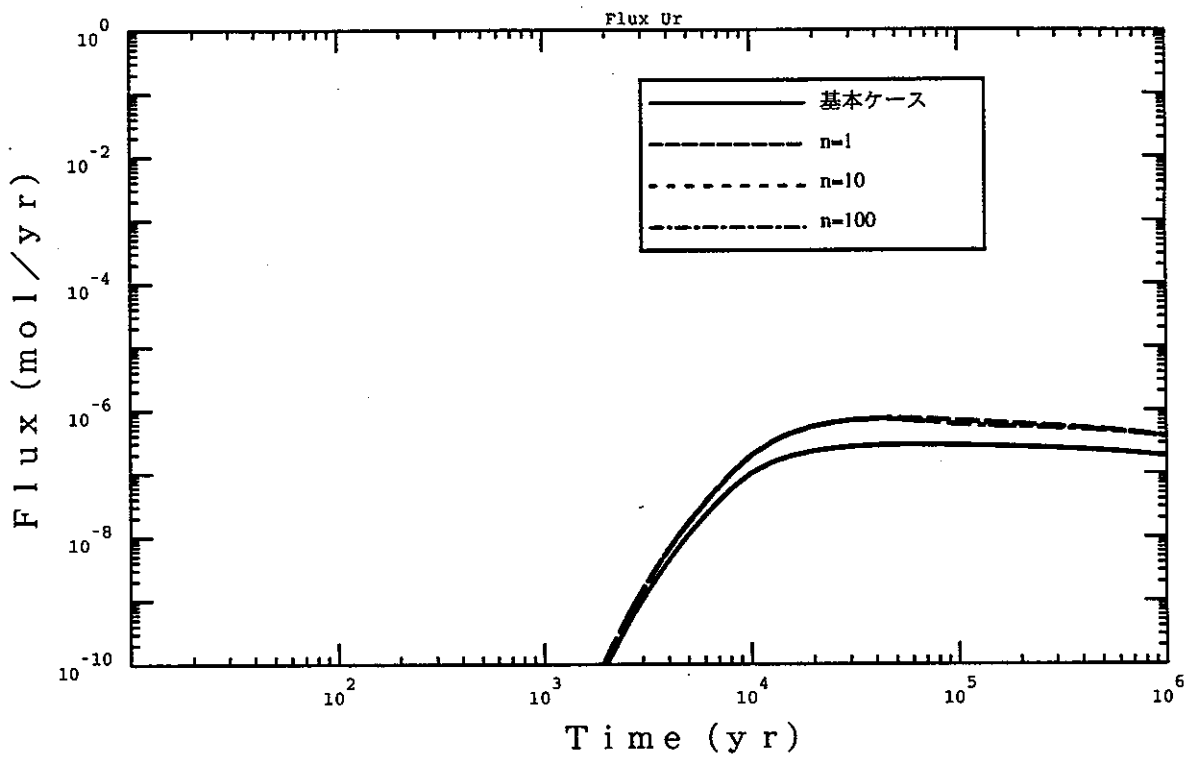


図 4.2.1-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
酸化性地下水浸入 (空間依存)  $\mu = 0.1, 1$  (K-2)

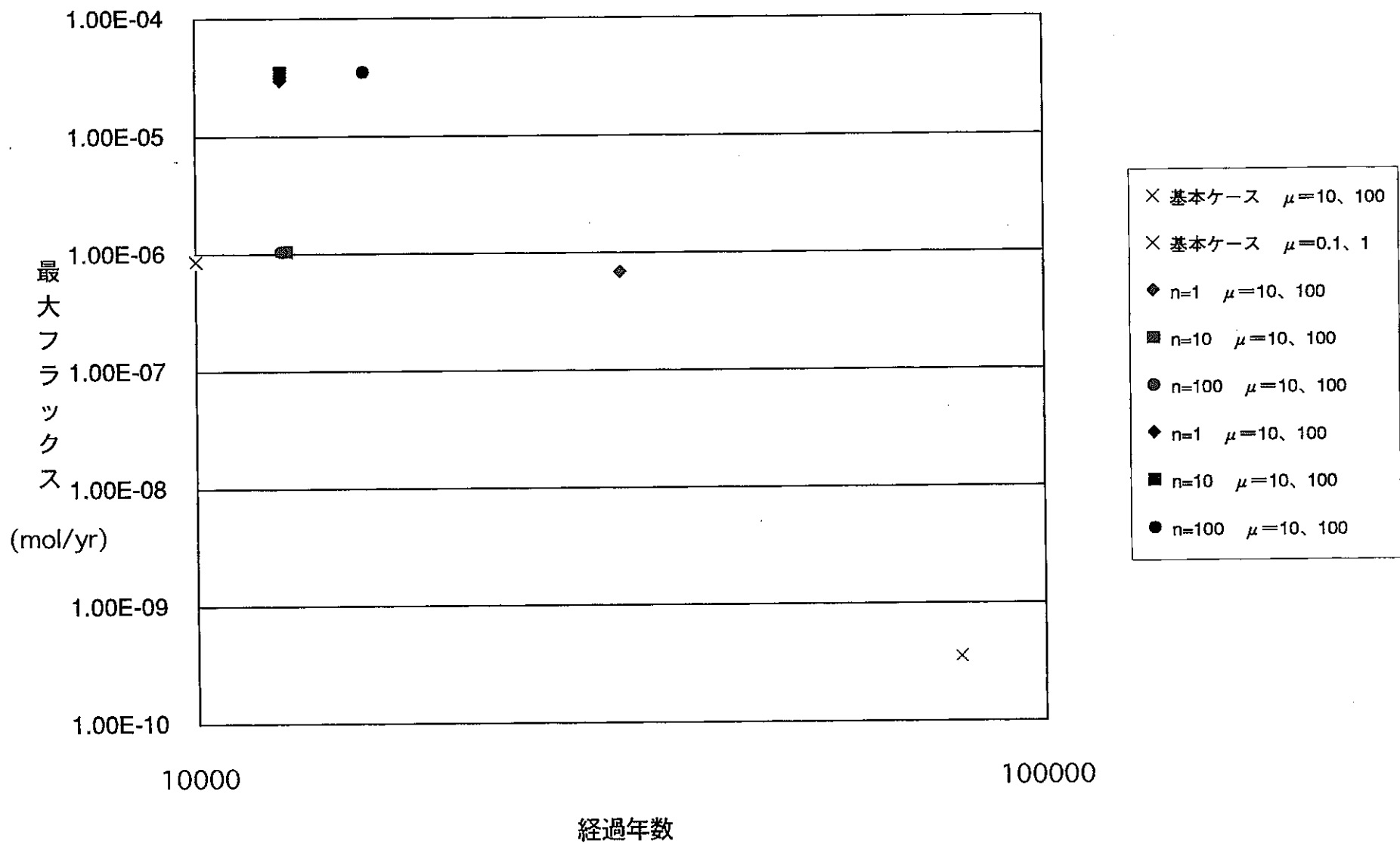


図4.2-1(1) 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響についての感度解析結果のまとめ(Np-237)

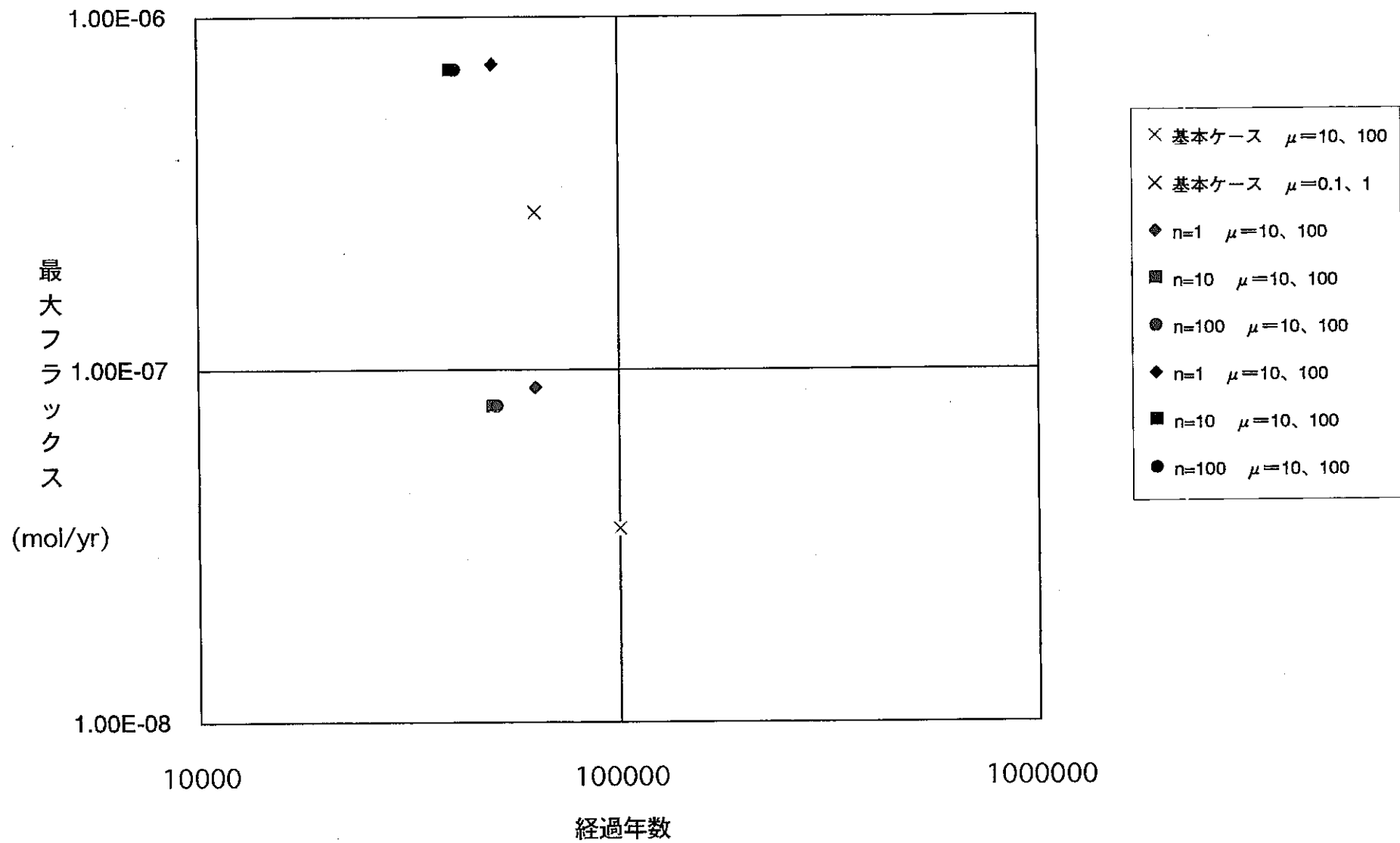


図4.2-1(2) 時間的に一定な環境条件の位置依存性による影響についての感度解析結果のまとめ(U-233)

### 4.3 時間・空間的に変動する環境条件による影響

本章では、レベル3として、4.1に述べた放射線分解の影響、及び4.2に述べた酸化性地下水浸入の影響について、溶解度の時間的な変化と位置依存性の双方を同時に考慮した解析を実施した。

#### 4.3.1 放射線分解による地下水peの変化

##### (1) Shadow 関数の設定

このケースでは、固化体中の $\alpha$ 放射性核種（特にAm-241）による地下水の放射線分解のために、リザーバ中の地下水が初期に酸化性へと変動し、比較的短半減期のAm-241が減衰した時点で再び還元性に回帰するものと考えた。また、ゆるみ域の地下水は、流量が大きく人工バリアから拡散で放出される酸化剤が希釈されること、及び母岩自体が還元能力を有することから常に還元性に保たれるものと仮定した。Shadow 関数としては、時間的に変化するこれら両端での溶解度の間を(4)式で示される関数により位置的に内挿する以下の形式を用いることとした。

$$c_{(r,t)}^* = \left\{ 1 - \left( \frac{\Gamma - \Gamma_{\text{reservoir}}}{\Gamma_{\text{buffer}} - \Gamma_{\text{reservoir}}} \right) \right\}^n c_{\text{reservoir}(t)}^* + \left( \frac{\Gamma - \Gamma_{\text{reservoir}}}{\Gamma_{\text{buffer}} - \Gamma_{\text{reservoir}}} \right)^n c_{\text{reducing}}^* \quad (5)$$

但し、

$c_{\text{reservoir}(t)}^*$ ; リザーバ中の溶解度

$$c_{\text{reservoir}(t)}^* = (1 - \Psi_{(t)}) c_{\text{red}}^* + \Psi_{(t)} c_{\text{ox}}^*$$

パラメータとしては、4.1と同じく $T=1000$ 、またここでは  $w=200$  とそれぞれ固定し、 $n$  を1及び0.01 と変化させることとした（この場合には、 $n$ が1より小の場合に $c_{(r,t)}^*$ は凹となる）。この場合の溶解度のShadow 関数としての表現を図4.3.1-1に示す（Uの溶解度の例）。

##### (2) 解析条件

溶解・沈澱反応速度が大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1)に述べた2

種類のShadow関数を考慮した合計4ケースの解析ケースの設定を表4.3.1-1にまとめる。



表4.3.1-1 放射線分解（時間・空間的変化）についての計算ケースの設定

ケース名	変動パラメータ値
L-1 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100)$ $(T,w,n)=(1000,200,1)$ $(T,w,n)=(1000,200,0.01)$
L-2 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1)$ $(T,w,n)=(1000,200,1)$ $(T,w,n)=(1000,200,0.01)$

### (3) 結果

(2) に述べた各ケースについての人工バリアからの核種放出率時間変化の算出結果を図4.3.1-2に示す。図から明らかな様に、(1) で仮定した位置依存性を考慮した場合には、基本ケースとの差異はほとんど生じない。これは、放射線分解の有意に生じるであろう初期の段階では沈澱量が限られており、またこれが還元性に保たれている緩衝材外周部でほとんど沈澱してしまうためと考えられる。

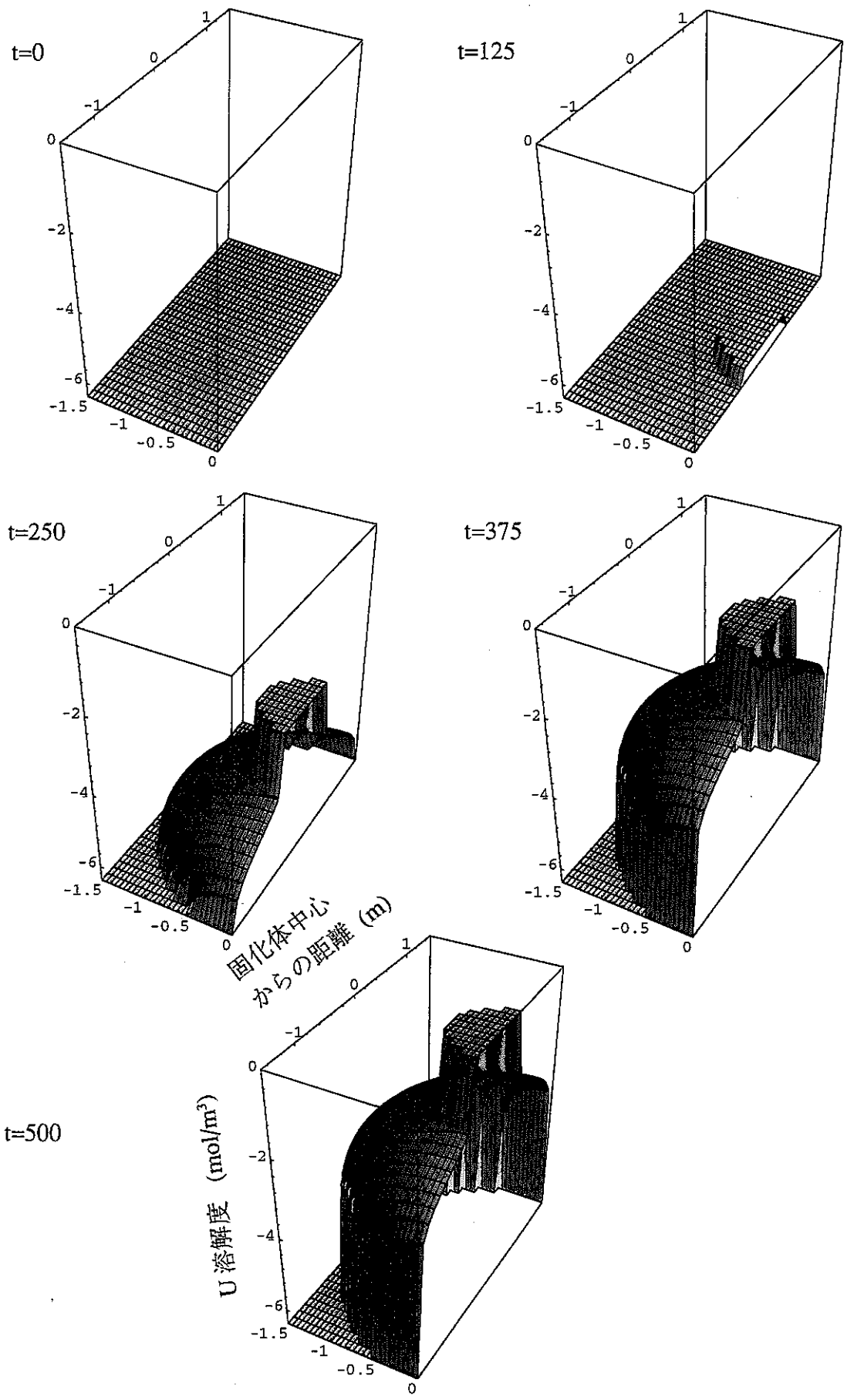


図 4.3.1-1 放射線分解（時間・空間的变化）による地下水  $p_e$  の変化に対応した Shadow 関数  $((T,w,n) = (1000, 200, 0.01)$  の例)

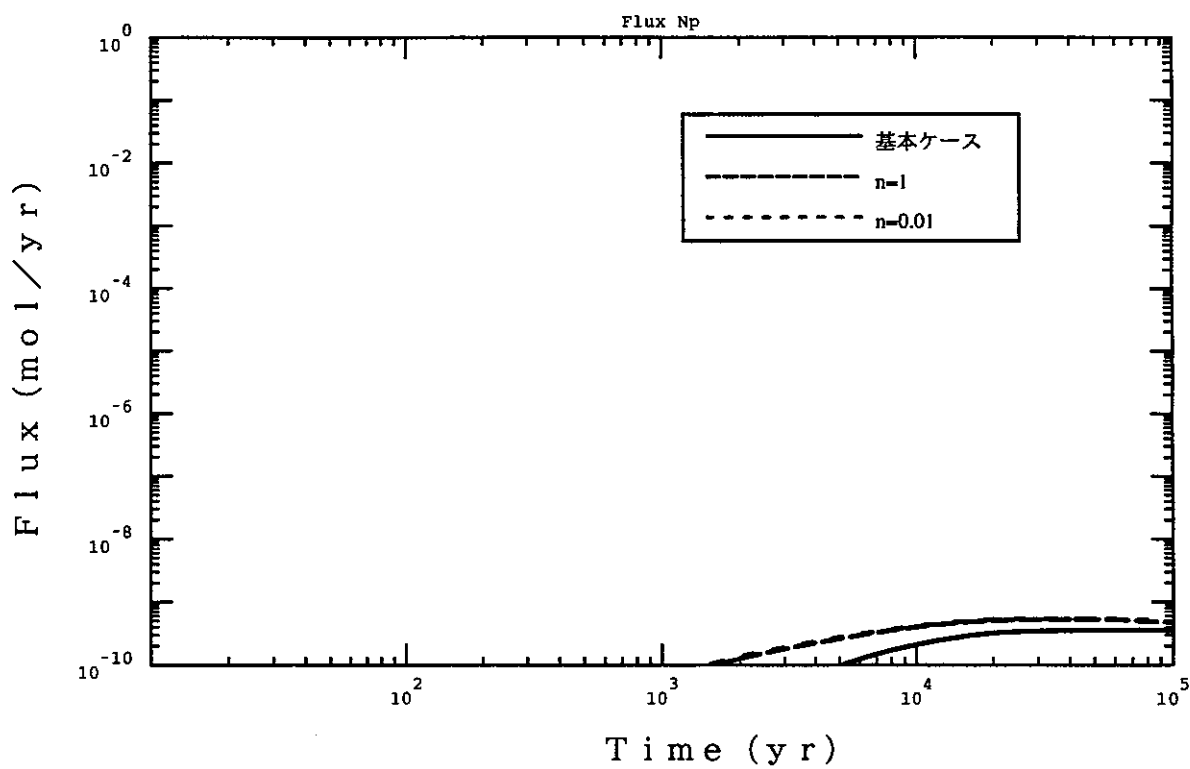


図 4.3.1-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
放射線分解 (時間空間依存)  $\mu = 10, 100$  (L-1)

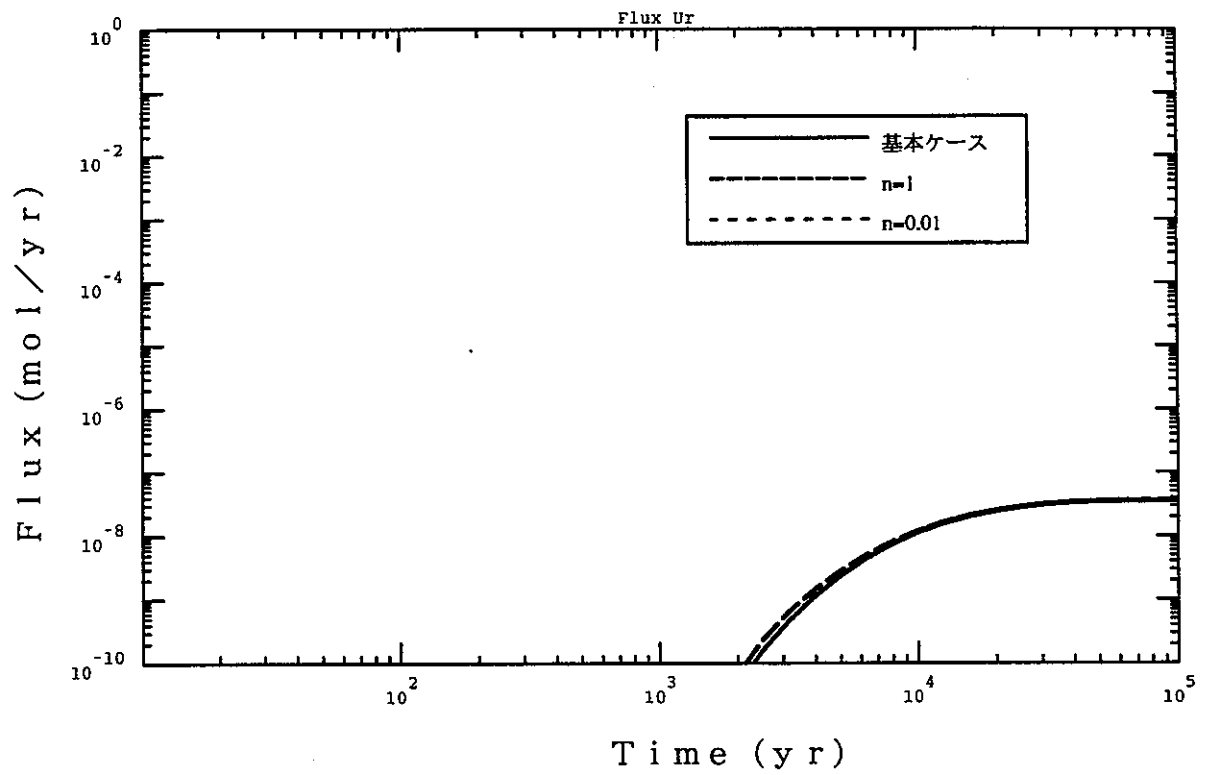


図 4.3.1-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
放射線分解 (時間空間依存)  $\mu = 10, 100$  (L-1)

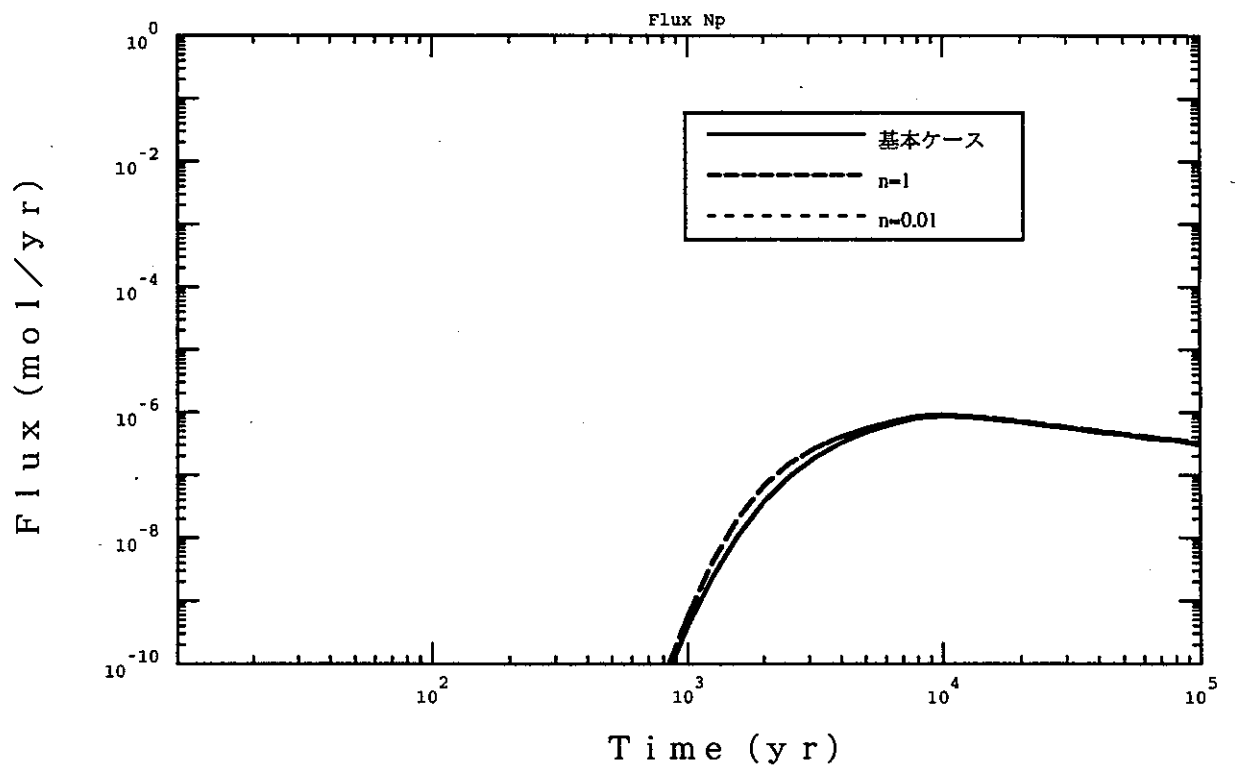


図 4.3.1-2 (3) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
放射線分解 (時間空間依存)  $\mu = 0.1, 1$  (L-2)

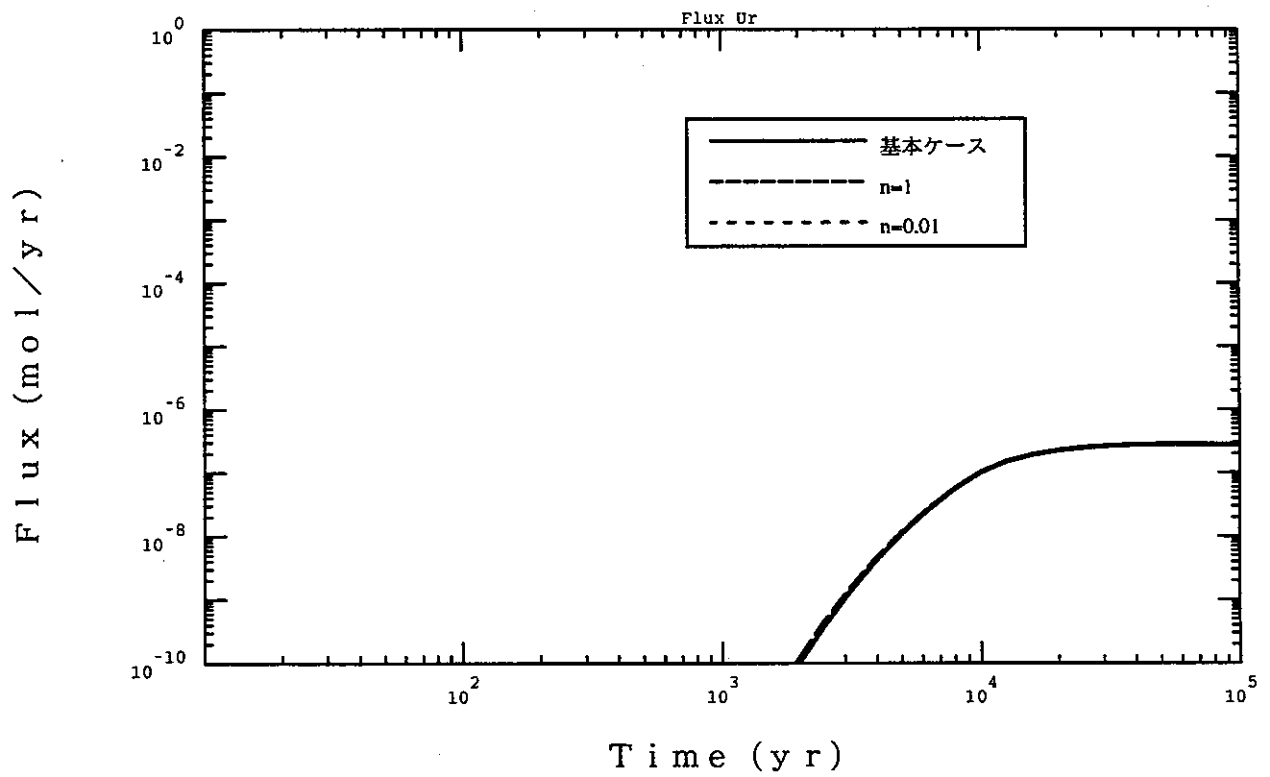


図 4.3.1-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
放射線分解 (時間空間依存)  $\mu = 0.1, 1$  (L-2)

### 4.3.2 酸化性地下水の浸入による地下水pe の変化

#### (1) Shadow 関数の設定

このケースでは、4.3.1とは逆に、酸化性地下水の浸入のためにゆるみ域内の地下水が一定期間酸化性に変化し、他方、リザーバ中の地下水は腐食生成物の還元能力により還元性に保たれることを想定した。この場合には、(5)式の $c^*_{(r,t)}$ の内外の位置関係を逆転することにより、以下のShadow関数が得られる。

$$c^*_{(r,t)} = \left\{ 1 - \left( \frac{\Gamma - \Gamma_{\text{reservoir}}}{\Gamma_{\text{buffer}} - \Gamma_{\text{reservoir}}} \right) \right\}^n c^*_{\text{reducing}} + \left( \frac{\Gamma - \Gamma_{\text{reservoir}}}{\Gamma_{\text{buffer}} - \Gamma_{\text{reservoir}}} \right)^n c^*_{\text{decompressed}(t)} \quad (6)$$

但し、

$c^*_{\text{decompressed}(t)}$ ; ゆるみ域中の溶解度

$$c^*_{\text{decompressed}(t)} = (1 - \Psi_{(t)}) c^*_{\text{red}} + \Psi_{(t)} c^*_{\text{ox}}$$

またここで、新たに形成された逆断層の影響が及ぶ期間を10万年程度 [King and Chapman, 1994] と考え、 $w=10^4$  と設定した。 $n$ については、1及び100の二種類を考えることとする。この場合の、溶解度のShadow関数としての表現を図4.3.2-1に示す( $n=1$ )。

#### (2) 解析条件

溶解・沈澱反応速度が大きい場合と小さい場合のそれぞれについて、(1)に述べた2種類のShadow関数を考慮した合計4ケースの解析ケースの設定を表4.3.2-1にまとめる。



表4.3.2-1 酸化性地下水浸入（時間・空間的変化）についての計算ケースの設定

ケース名	変動パラメータ値
M-1 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(10,100)$ $(T,w,n)=(10^5, 10^4,1)$ $(T,w,n)=(10^5, 10^4,100)$
M-2 #1 #2	$(\mu_{st}, \mu_{ms})=(0.1,1)$ $(T,w,n)=(10^5, 10^4,1)$ $(T,w,n)=(10^5, 10^4,100)$

### (3) 結果

各ケースについて人工バリアからの核種放出率の時間的変化を算出した結果を図4.3.2-2に示す。Np-237については、いずれの場合も基本ケースからの放出率の上昇が有意であり、特にケースM-1においては、差異は3桁以上となっている。4.3.1との相異は、内外の位置関係の逆転以上に、変化のタイミングとタイムスケールが大きく異なること、つまり本ケースでは定常到達後に十分外側にまで沈澱が生成していること及び酸化性雰囲気継続期間が長く放出率がこの条件に対応したピークにまで上昇し得るためと考えられる。

以上の時間・空間的環境条件変化についての感度解析の結果を図4.3-1にまとめる。

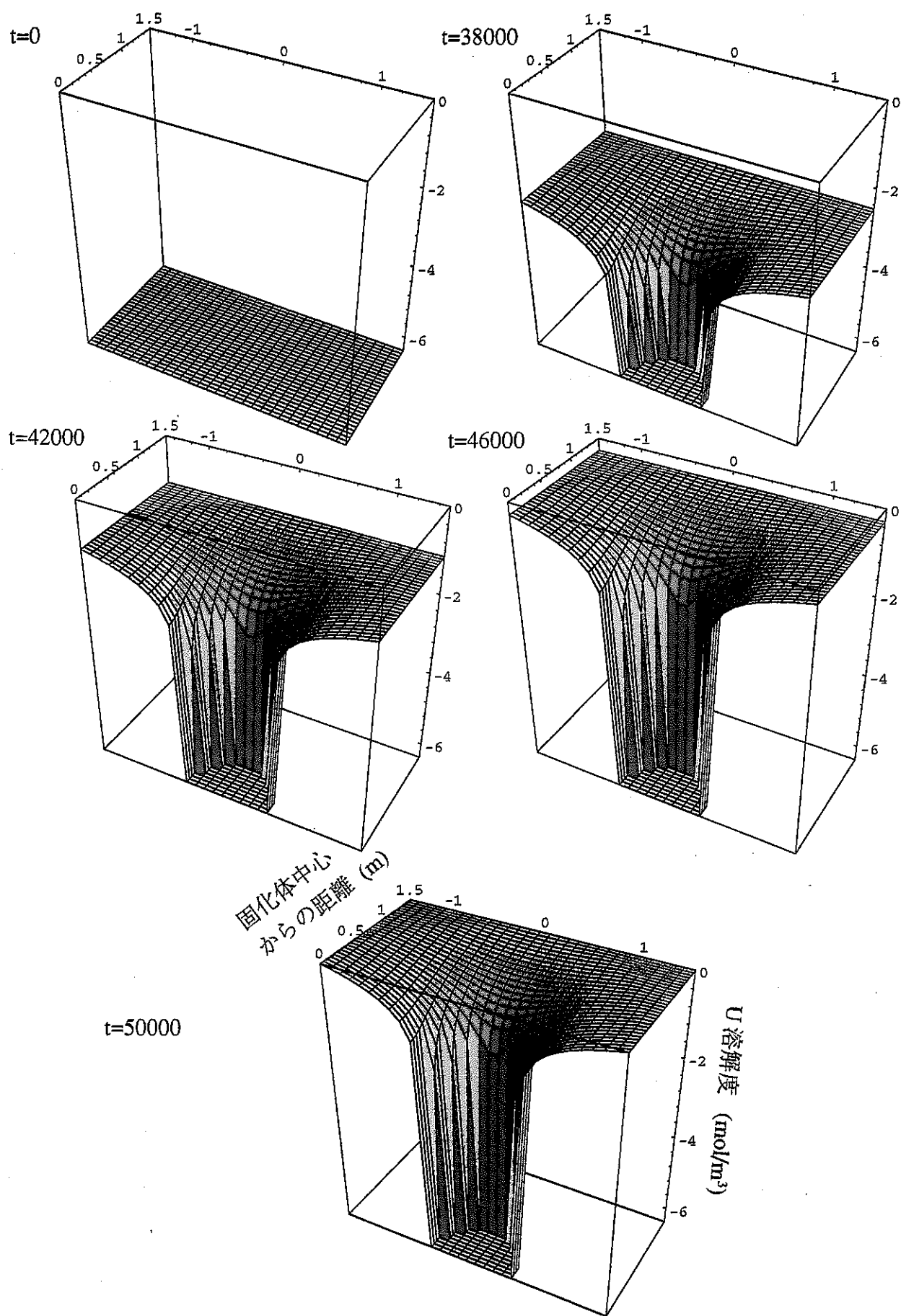


図4.3.2-1 酸化性地下水の浸入による地下水peの変化（時間・空間的变化）に対応したShadow関数（ $n=1$ ）

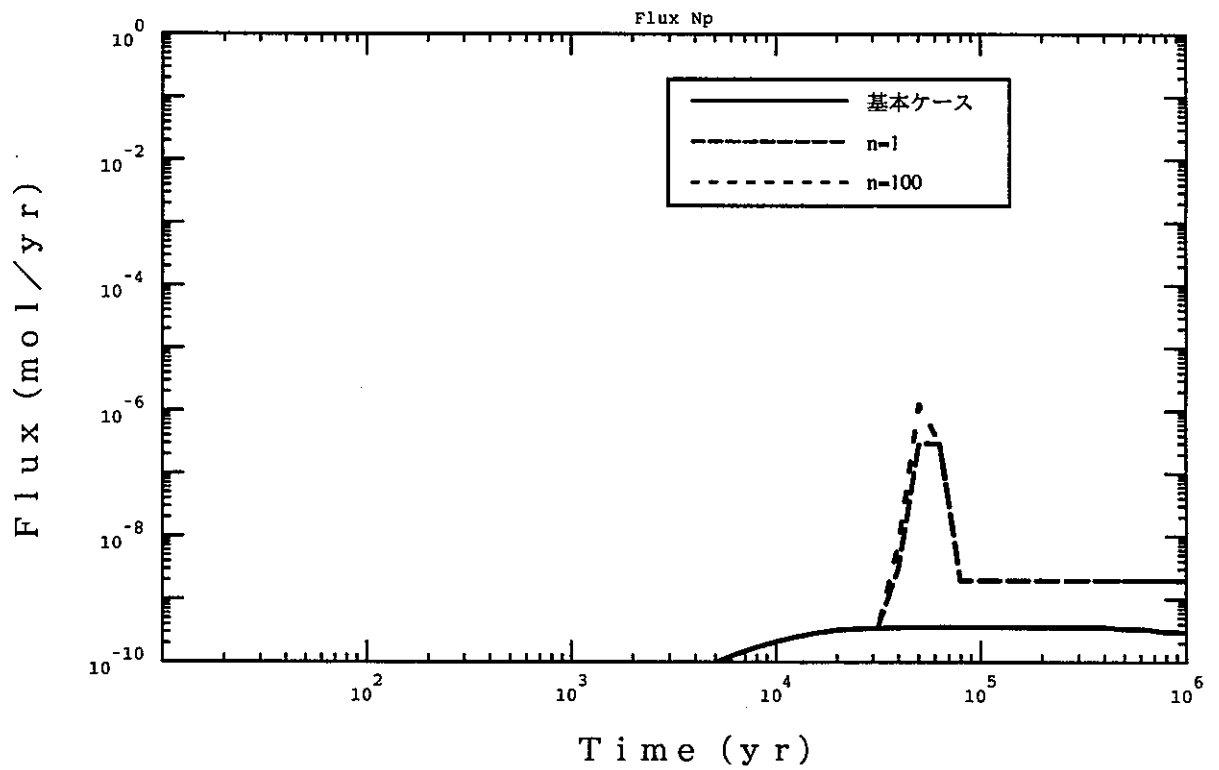


図 4.3.2-2 (1) 人工バリアからの核種放出率 (Np)  
酸化性地下水浸入 (時間空間依存)  $\mu = 10, 100$  (M-1)

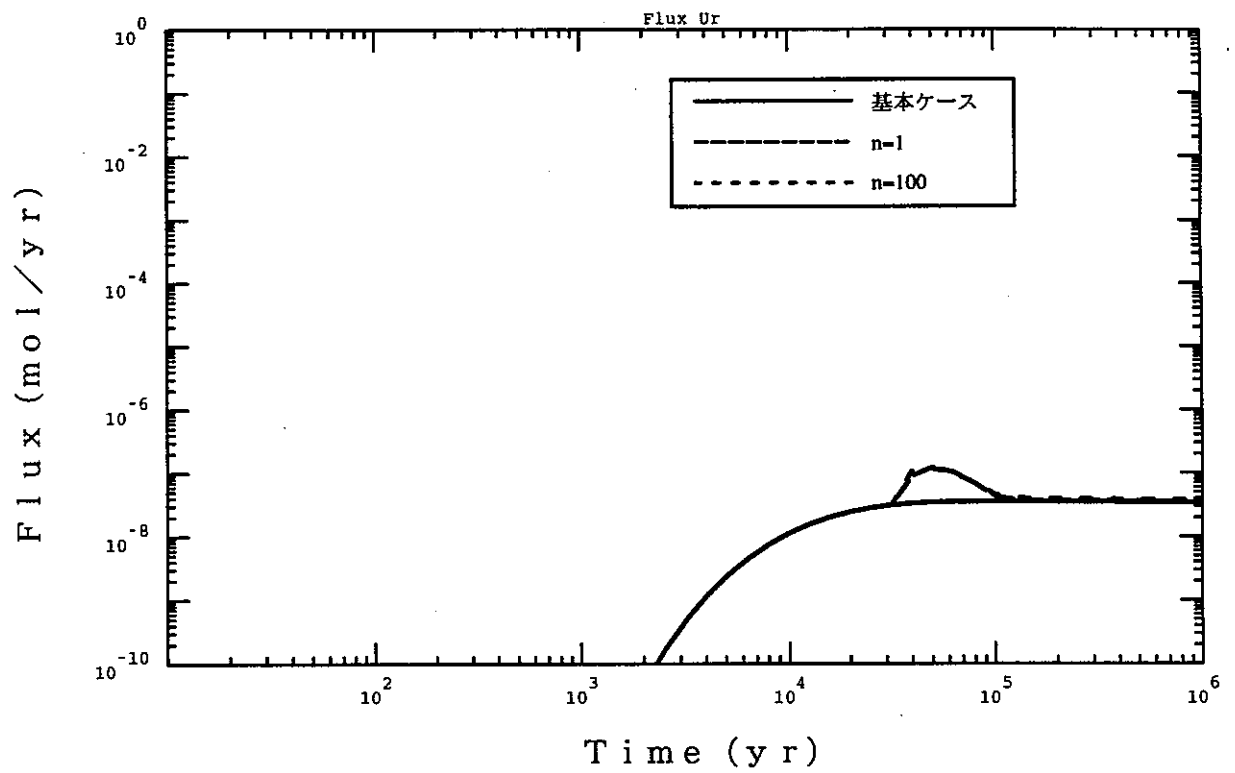


図 4.3.2-2 (2) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
 酸化性地下水浸入 (時間空間依存)  $\mu = 10, 100$  (M-1)

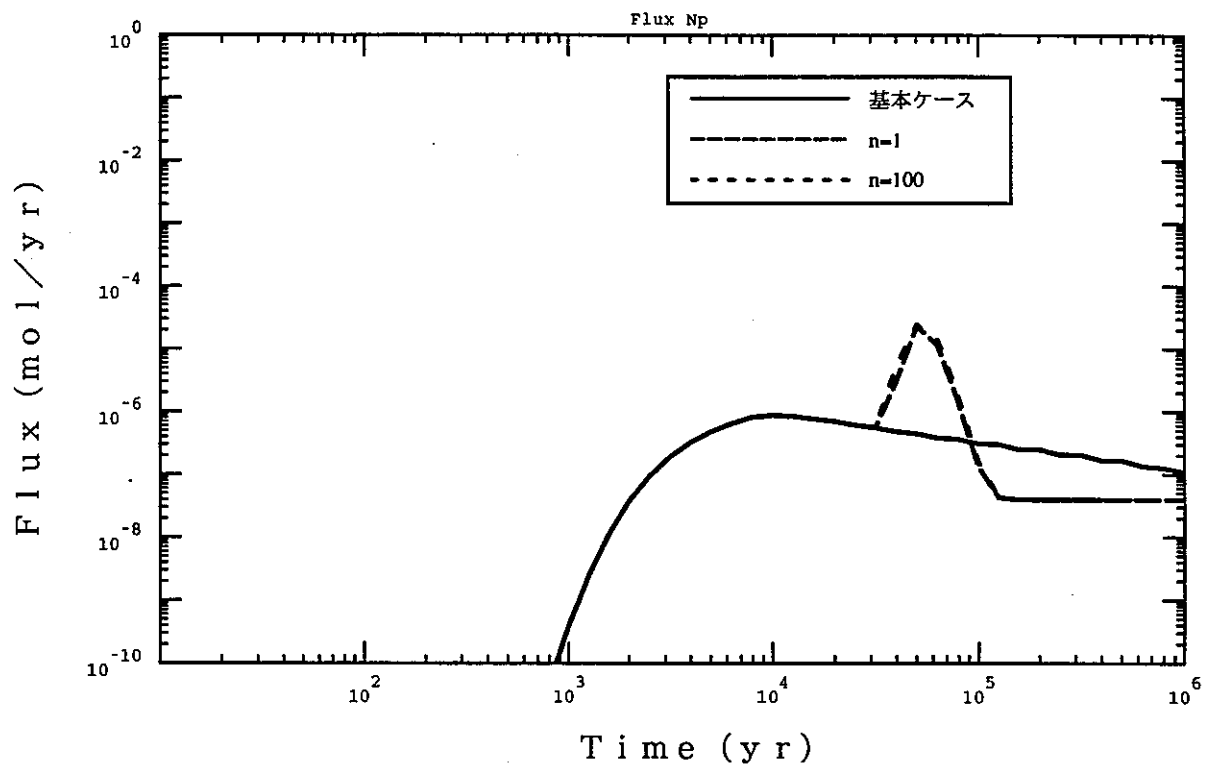


図 4.3.2-2 (3) 人工バリアからの核種放出率(Np)  
酸化性地下水浸入 (時間空間依存)  $\mu = 0.1, 1$  (M-2)

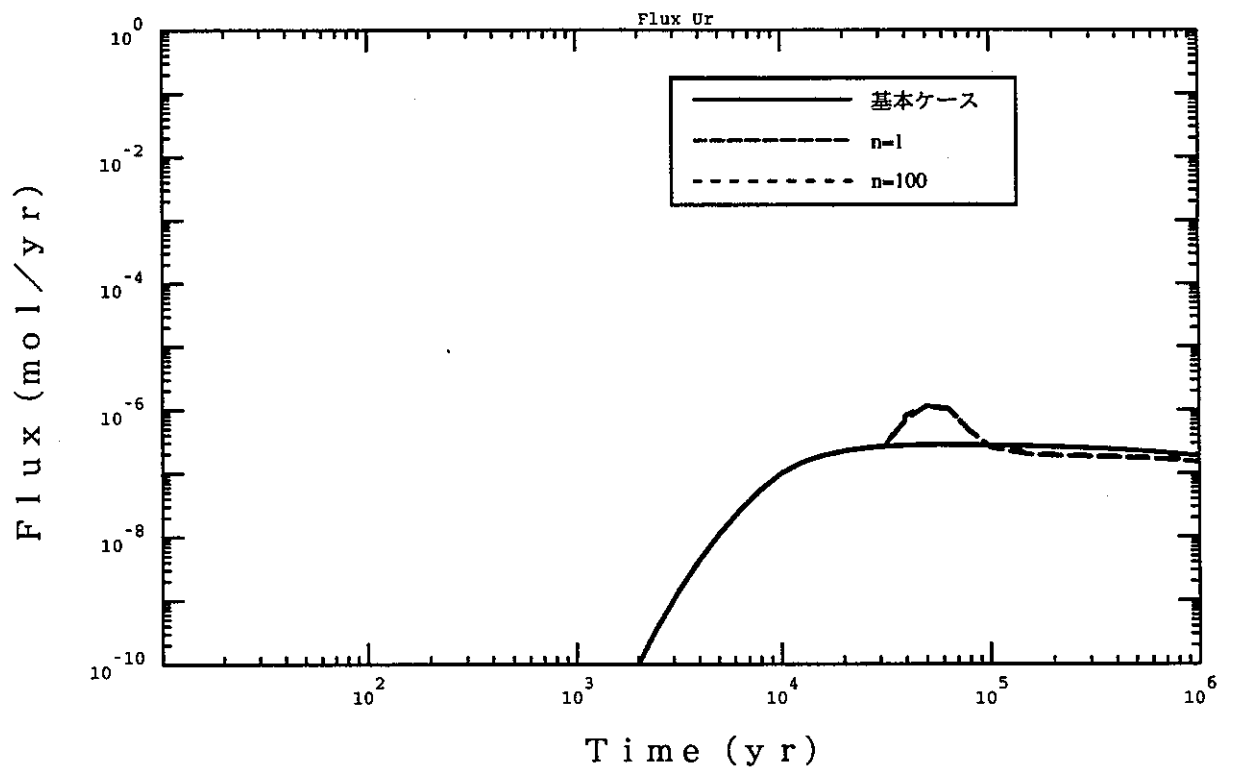


図 4.3.2-2 (4) 人工バリアからの核種放出率 (U)  
酸化性地下水浸入 (時間空間依存)  $\mu = 0.1, 1$  (M-2)

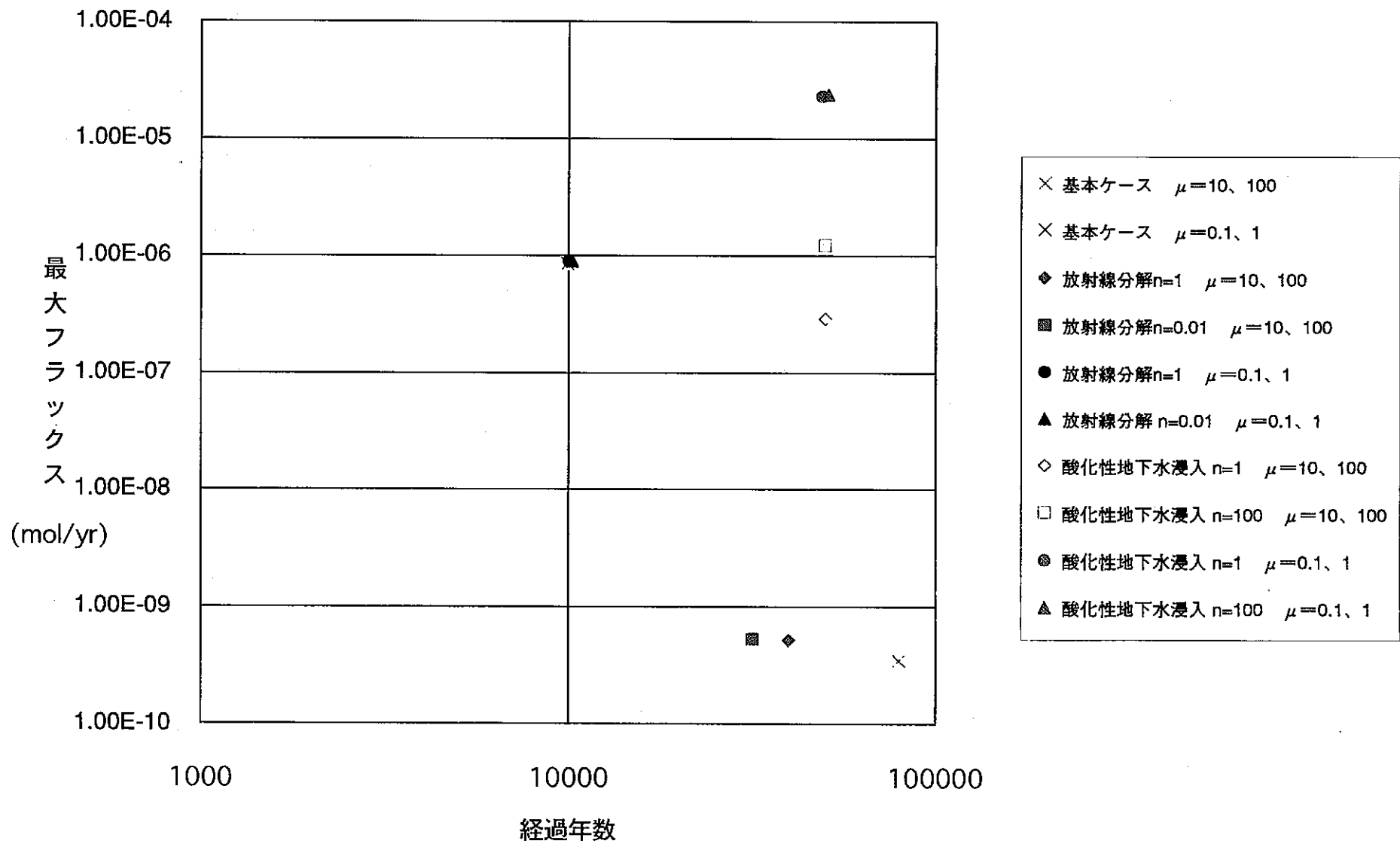


図 4.3-1(1) 時間・空間的に変動する  
環境条件による影響(Np-237)



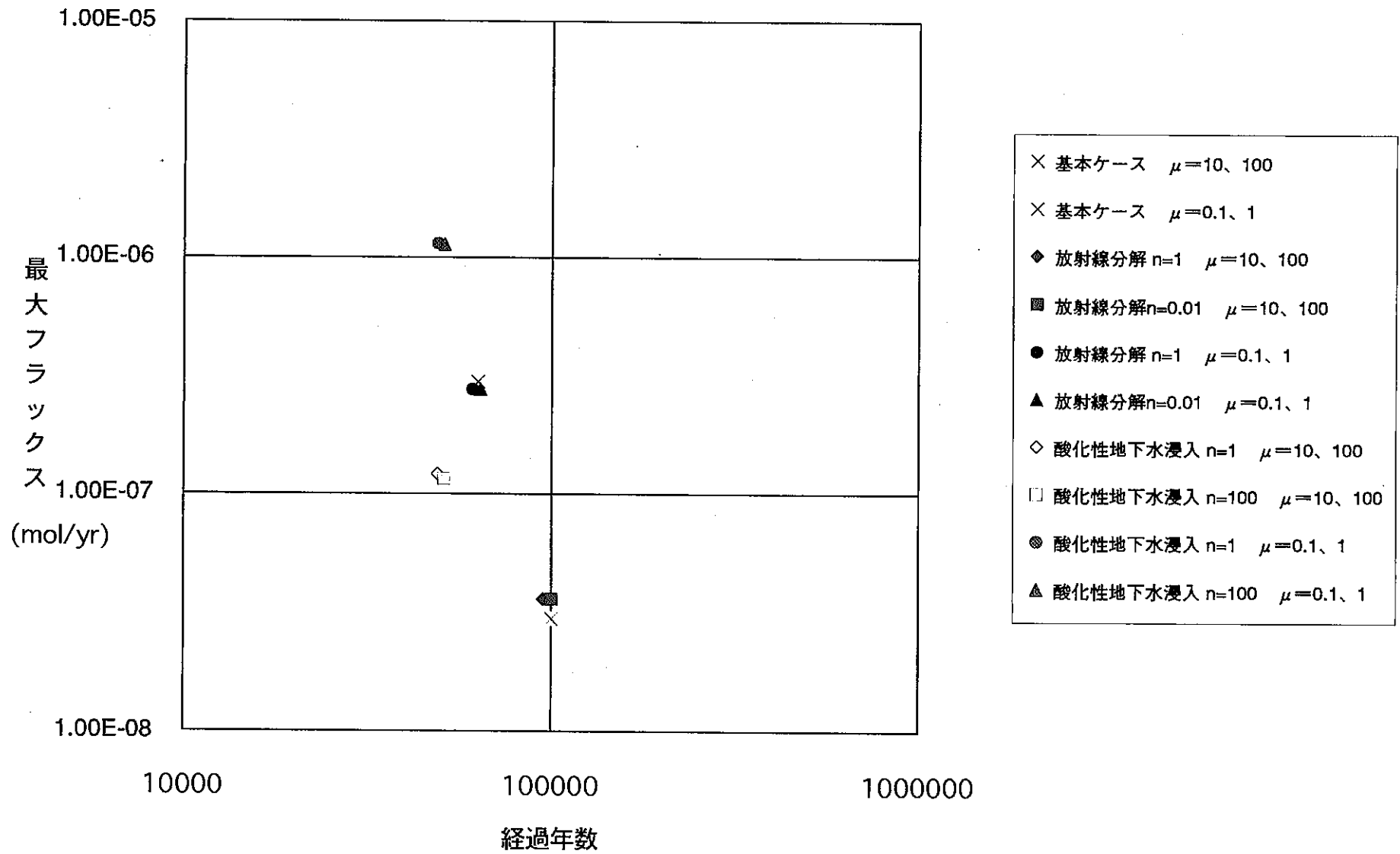


図 4.3-1(2) 時間・空間的に変動する  
環境条件による影響(U-233)

## 5. まとめ及び今後の課題

昨年度の研究において開発した広義拡散方程式によるアプローチを踏襲し、

- ・シナリオ
- ・モデル
- ・パラメータ

に含まれる多様な選択肢の存在という性能評価に含まれる主要な不確実性要因の全てについて、統一的な方法で体系的に感度解析を行う手法（動的解析手法）の開発を更に進めた。より具体的には、単核種（崩壊連鎖は考慮しない）の分子拡散による移行について溶解・沈澱、吸着、コロイド生成等を瞬時平衡仮説により取り扱うものであった昨年度のモデルを発展させ、

- ・3メンバーの崩壊連鎖
- ・ケイ素の溶解、沈澱、及び移行挙動を考慮したガラス溶解
- ・ガラス溶解と congruent な核種溶出
- ・速度論的な反応モデルによる安定相及び準安定相の溶解、沈澱
- ・真性コロイド生成解離、及び分子拡散
- ・真性コロイドの線形、可逆な捕捉（吸着）
- ・真性コロイドの不可逆な捕捉（凝集 等）
- ・準安定相から安定相への固相－固相変化（結晶化）
- ・ケイ素、鉄共沈による固化体近傍ケイ素濃度の低下とこれに起因するガラス溶解速度の増加

といった核種移行挙動自体についての種々のシナリオ、モデルを取り込んだものとした。また、これに加えて、ニアフィールド環境条件の変化が、核種移行の主要なパラメータである放射性元素の溶解度に及ぼす影響を解析することを可能とした。具体的には、環境変化を、

- 1) 時間的な変化のみ（位置依存性は無視）
- 2) 位置依存性（時間的な変化は無視）
- 3) 時間的な変化と位置依存性の両方を考慮

という3つのレベルに区分して段階的にモデル化し、これらによって引き起こされる核種移行への影響を定量的に検討可能なものとした。ここで、各レベルでの環境条件の取扱は、個別の事象を詳細にモデル化するのではなく、環境変化の時間・空間的なパターンを代表的な関数形で表現するShadow関数を用いた。

以上の新たな手法・モデル開発に加え、その適用性を確認するために昨年度本研究で開発した汎用DAEソルバーSPADE上でプログラム化し、これを用いて核種移行挙動の各シナリオ、モデル及びパラメータ、さらに、

- ・放射線分解による地下水 $p_e$ の変化
- ・海水準変動によるニアフィールド水理の変化
- ・隆起、浸食による地下水 $p_e$ の変化
- ・ seismic pumping による酸化性地下水の浸入

といった環境変化に関して、Shadow関数に含まれるコントロールパラメータ（変化の範囲、程度等）を種々に変化させて感度解析を実施した。

本年度の研究における感度解析は、未だ、手法とモデルの適用性の確認に主眼を置く物であり、個々の解析で得られた結果は今後の研究開発の方向性を示すものとして有効ではあるが、安全性について確言するためには、さらに本研究を継続して行う必要がある。特に、今年度はアクチニド1系列（3核種）、核分裂生成物2核種に限られていた対象核種を増やし、また、いわゆるshared solubilityの問題を含めて4崩壊系列を同時に解析できるような拡張を行うこと、及び、特にシナリオ、モデルの抽出を体系的なシナリオ作成の手法(Top down法、Bottom up法、あるいはこれらの複合)と組み合わせることにより、より体系的かつdefensiveなものとしていくことが重要と考えられる。

## 参 考 文 献

- Andersson, K., M.J. Apter, R.C. Arthur, J.L. Conca, P.F. Salter, K. Worgan, and W. Zhou, (1993), "Survey and Review of Near-Field Performance Assessment", Intera Information Technologies, Technical Report IED-O-9208-1
- Bourcier W. L., (1991), "Overview of Chemical Modelling of Nuclear Waste Glass Dissolution", in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV*, ed. T. Abrajano and L. Johnson, Materials Research Society, Pittsburgh, PA, pp.3-18
- Chambré, P.L., C.H. Kang, W.W. Lee, and T.H. Pigford, (1988), "The Role of Chemical Reaction in Waste-Form Performance", in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI*, eds. M.J. Apter and R.E. Westerman. Materials Research Society, Pittsburgh, PA, pp.285-291
- 動力炉・核燃料開発事業団、1992年、"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—"
- Grambow, B. and D.M. Strachan, (1988), "A Comparison of the Performance of Nuclear Waste Glasses by Modeling" in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI*, eds. M.J. Apter and R.E. Westerman. Materials Research Society, Pittsburgh, PA
- Helgesson, H.C., (1979), "Mass Transfer Among Minerals and Hydrothermal Solutions", in *Geochemistry of Hydrothermal Ore Deposits*, ed. H. Barnes, Wiley-Interscience, New York
- Johnson, J.W., E.H. Oelkers, and H.C. Helgesson, (1992), "SUPCRT92: a software package for calculating the standard molal thermodynamic properties of minerals, gases, aqueous species and reactions from 1 to 5000 bar and 0°C~1000°C", *Computers and Geosciences* 18: pp.899-947
- King, L.M. and N.A. Chapman, (1994), "Technical Support for TEPCO Scenario Development", Intera Report IG3954-1 (Confidential)
- Mouche, E. and E. Vernaz, (1988), "Aqueous Corrosion of the French LWR Solution Reference Glass: First Generation Model", in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI*, eds.

M.J.Apted and R.E.Westerman. Materials Research Society, Pittsburgh, PA, pp.703-712

Muir Wood, R., (1993), "Hydrological Signatures of Earthquake Strain", *Journal of Geophysical Research*, vol.98, No.812, pp.22,035-22,068

中垣正幸、福田清成、1993、"コロイド化学の基礎"、日本化学会編 新基礎化学シリーズ(5)、大日本図書

Prigogine, I. and R.Defay, (1954), "Chemical Thermodynamics", *Everett Longmans*, New York

Shimizu, K., K.Ishimaru, K.Furuya, and Y.Yusa, (1992), "Natural processes and events relevant to long-term stability of geological environment in Japan", in *Waste Disposal and Geology; Scientific Perspectives, Proceedings of Workshop WC-1 of the 29th International Geological Congress*, Tokyo, pp. 381-394

Takase, H. and P.Grindrod, (1994), "Precipitation Kinetics of Radioactive Elements and Their Effect upon Redox Conditions of the Near Field", in *Proceedings of the fifth annual international conference of highlevel radioactive waste management*, American Nuclear Society.

高瀬 博康、1994、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報告書、PNC ZJ1281 94-007

Umeki, H., K.Ishiguro, H.Takase, M.Yui, N.Sasaki, and S.Masuda, (1991), "Site-generic approach for performance assessment of HLW disposal system in Japan", in *Proceedings of the second annual international conference of highlevel radioactive waste management*, American Nuclear Society.

## 付録 1 ニアフィールド現象に関するFEPリスト

# FEP'sリスト

Time Space	閉鎖		オーバーバック健全期		オーバーバック破損後	
	建設・操業	再冠水	飽和	再冠水	飽和	再冠水
		~10 <sup>1</sup>	~10 <sup>2</sup>	~10 <sup>1</sup>	~10 <sup>2</sup>	~10 <sup>3</sup>
ニアフィールド母岩	R-1 EDZ の形成	R-21 EDZ の再冠水	R-41 熱による水理条件の変化	R-71 核種移行	R-88 地下水流れ	R-103 地下水化学の変化
	R-2 EDZ の逸水	R-22 緩衝材・母岩境界での地下水流	R-42 不飽和 (~10 <sup>1</sup> y)	R-72 溶解・沈殿・結晶化 (元素溶解度)	R-89 有効水理特性	R-104 熱による化学条件の変化
	R-3 湧水による充填物の流出	R-23 熱拡散	R-43 熱による母岩の亀裂開口幅の変化	R-73 移流/分散	R-90 「水みち」の特徴	R-105 母岩と地下水の相互作用
	R-4 応力場の変化	R-24 熱による水理条件の変化	R-44 母岩の変形	R-74 拡散	R-91 地下水移行経路	R-106 亀裂表面の風化び鉱物化
	R-5 母岩の変形 (力学的緩み域発生)	R-25 ベントナイト流出	R-45 ベントナイトの流出	R-75 マトリクス拡散	R-92 熱による水理条件の変化	R-107 ガス溶解
	R-6 立坑バスの存在	R-26 母岩の変形	R-46 圧縮	R-76 収着	R-93 地下水移送特性 (タイプ)	R-108 鉱物組成
	R-7 空気の岩盤内拡散	R-27 熱による母岩の亀裂開口幅の変化	R-47 クリープ	R-77 非線形収着	R-94 動水勾配変化	R-109 酸化性雰囲気
	R-8 二相流	R-28 クリープ	R-48 ベントナイト膨潤がEDZ に与える影響	R-78 天然コロイド	R-95 地圧	R-110 放射線分解
	R-9 母岩と地下水の相互作用	R-29 多相流およびガスに駆動された地下水流動	R-49 多相流およびガスに駆動された地下水流動	R-79 コロイド形成・溶解及び移動	R-96 ガス圧の効果	R-111 照射損傷
	R-10 地下水化学の変化	R-30 ガスによる効果	R-50 ガス移行	R-80 有機物	R-97 クリープ現象	
	R-11 酸化性雰囲気	R-31 不均質系での地下水流動	R-51 地下水の化学的変遷	R-81 微生物	R-98 圧縮	
	R-12 EDZ での不飽和帯形成による REDOX 境界変化	R-32 地下水化学の変化	R-52 酸化性雰囲気	R-82 錯形成	R-99 熱による母岩の亀裂開口幅の変化	R-112 臨界
	R-13 微生物の侵入	R-33 母岩と地下水の相互作用	R-53 熱による化学条件の変化	R-83 再濃集	R-100 母岩の変形	
	R-14 密度流 (地熱勾配)	R-34 亀裂表面の風化及び鉱物化	R-54 母岩と地下水の相互作用	R-84 EDZ からの核種溶出	R-101 ガス移行	
	R-15 密度流 (熱勾配)	R-35 熱による化学条件の変化	R-55 亀裂表面の風化及び鉱物化	R-85 放射線変	R-102 密度流 (地熱勾配)	
	R-16 有機物の影響	R-36 酸化性雰囲気	R-56 REDOX 状態の変化	R-86 放射性核種及び酸化性因子のチャンネル流		
		R-37 REDOX 境界の変化 → 地下水、鉱物	R-57 密度流 (地熱勾配)	R-87 質量・同位体・化学種の希釈		
		R-38 密度流	R-58 密度流 (熱勾配)	R-116 REDOX 状態の変化		
		R-39 有機物の影響				
		R-40 微生物の影響				
緩衝材	B-1 施工と組成	B-21 再冠水	B-41 飽和	B-71 核種移行	B-83 緩衝材中の水の移動	B-94 地下水化学の変化
	B-2 化学的風化作用	B-22 水の移動 (水銀)	B-42 緩衝材中の水の移動	B-72 核種遅延	B-84 熱による水理条件の変化	B-95 人工材料と空隙水の相互作用
	B-3 緩衝材の圧縮・空隙の生成	B-23 拡散	B-43 不透水性	B-73 元素溶解度・析出	B-85 ガスによる駆動	B-96 オーバーバックとの反応
		B-24 多相流及びガスに駆動された地下水流動	B-44 膨潤圧	B-74 拡散	B-86 膨潤圧	B-97 熱による化学条件の変化
		B-25 緩衝材の圧縮・空隙の生成	B-45 塑性	B-75 収着	B-87 土壌や有機物の残骸の蓄積	B-98 酸化性雰囲気
		B-26 ベントナイトの流出	B-46 エロージョン/ コロイド生成	B-76 化学的勾配	B-88 ベントナイトの流出	
		B-27 土壌や有機物の残骸の蓄積	B-47 沈下	B-77 ガスの効果	B-89 クリープ	
		B-28 ベントナイトの変質 (Ca型、イリト化、CPの影響、コンクリートの影響)	B-48 クリープ	B-78 微生物	B-90 ベントナイトの変質 (Ca型、イリト化、CPの影響、コンクリートの影響)	
		B-29 熱的変遷	B-49 応力場の変化	B-79 有機物	B-91 鉱物変遷 / 溶解/ろ過	
		B-30 熱による水理条件の変遷	B-50 ベントナイトの変質 (Ca型、イリト化、CPの影響、コンクリートの影響)	B-80 放射線分解	B-92 セメンテーション	
		B-31 地下水化学の変化	B-51 土壌や有機物の残骸の蓄積	B-81 再濃集	B-93 照射損傷	
		B-32 人工材料と空隙水の相互作用	B-52 ガスによる駆動	B-82 コロイド発生		
			B-53 地下水化学の変化	B-83 錯形成		
			B-54 熱による化学条件の変遷	B-84 質、同位体、化学種の希釈		
			B-100 REDOX 状態の変化			
			B-101 REDOX 状態の変化			
			B-55 酸化性雰囲気			
			B-56 人工材料と空隙水の相互作用			

Time Space	建設・操業	閉鎖		オーバーバック健全期		オーバーバック破損後			
		再冠水	~10 <sup>2</sup>	飽和	~10 <sup>3</sup>				
オーバーバック (腐食生成物)	0-1 肉厚 0-2 放射線遮蔽 0-3 製作ミス	0-21 腐食 0-22 酸化性腐食 0-23 微生物腐食 0-24 還元性腐食 0-25 局部腐食 0-26 マクロセル腐食 0-27 孔食・すきま腐食 0-28 全面腐食 0-29 SCC 0-30 有機物の効果 0-31 健全性(その他の効果) 0-32 総合腐食速度 0-33 腐食生成物の生成/変遷、移行 0-34 応力場の変化 0-35 人工材料と空隙水の相互作用 0-36 熱による化学条件の変化 0-37 照射損傷 0-38 コロイドの生成 0-39 ガスとの反応	0-41 破損 0-42 水素発生型腐食 0-43 水素発生 0-44 水素脆化の生起 0-45 水素蓄積 0-46 水素移行 0-47 水素の腐食への影響 0-48 全面腐食 0-49 SCC 0-50 有機物の効果 0-51 腐食生成物の生成/変遷、移行 0-52 腐食生成物の物理的影響(膨潤) 0-53 応力場の変化 0-54 沈下 0-55 化学的緩衝 0-56 Eh緩衝 0-57 酸化性雰囲気 0-58 人工材料と空隙水の相互作用 0-59 コロイド生成・溶解/移動 0-60 温度 0-61 熱による化学条件の変化 0-62 残存オーバーバック 0-63 照射損傷 0-64 微生物の影響	0-71 核種移行 0-72 吸着 0-73 溶解・沈殿及び結晶化(含共沈) 0-74 コロイド生成・溶解/移動 0-75 ガスを媒体とした物質移動 0-76 再濃集 0-77 放射壊変 0-86 拡散 0-87 錯体形成 0-88 REDOX 状態の変化	0-78 腐食(腐食膨張・ガス発生) 0-79 水素発生型腐食 0-80 水素蓄積 0-81 水素移行 0-82 応力場の変化 0-83 酸化性雰囲気 0-84 照射損傷  0-85 臨界				
	ガラス固化体	G-1 発熱	G-21 発熱 G-22 圧縮	G-41 発熱 G-42 圧縮	G-71 ガラスからの核種溶出 G-72 ガラス変質・溶解 G-73 コングレート溶解 G-74 元素溶解度 G-75 溶解、沈殿および結晶化 G-76 溶解度制限固相の変化 G-77 ガラス溶解速度 G-78 核種インベントリ G-79 ボイド G-80 ガラスの割れ G-81 ガラスの表面積 G-82 ガラスの結晶化 G-83 ガラスの相分離	G-84 溶質移送抵抗 G-85 ケイ酸塩ゲルの析出 G-86 コロイド生成 G-87 有機物 G-88 微生物 G-89 放射壊変 G-90 放射線損傷 G-91 放射線分解 G-92 圧縮	G-93 pHの変動 G-94 廃棄体と空隙水の相互作用 G-95 鉄腐食生成物との反応 G-96 錯形成種 G-97 熱による化学条件の変化 G-98 酸化性雰囲気 G-99 REDOX フロント  G-100 臨界 G-101 発熱		



## 付録 2 汎用DAEサーバーSPADEユーザズガイド

## 汎用DAEサーバーSPADEユーザズガイド

## 目 次

### 第I部 理論編

1.SPADEの基本機能 .....	2-1
2.DAEについての理論 .....	2-1
2.1DAEの一般形 .....	2-1
2.2DAEのインデックス .....	2-2
2.3インデックスの降下と制約条件の安定化 .....	2-3
3.stiffな問題のための時間差分の方法 .....	2-4
3.1stiffな常微分方程式及びこれに対する解法の要件 .....	2-4
3.2従来の陰解法 .....	2-5
3.3改良BDP法 .....	2-6
3.3.1Predictor及びCorrectorの公式 .....	2-6
3.3.2誤差管理とタイムステップサイズ及び予測オーダーの調整 .....	2-11
4.SPADEの解法 .....	2-14
4.1解法の原理 .....	2-14
4.2数値解法の概要 .....	2-15

### 第II部 実践編

1.概要 .....	2-20
2.問題の定式化 .....	2-20
3.SPFファイルのフォーマット（スカラー問題） .....	2-20
3.1名称の指定 .....	2-20
3.2演算子と関数 .....	2-21
3.3定数 .....	2-21
3.4時間変数 .....	2-21
3.5方程式 .....	2-21

3.6初期条件	2-22
3.7サイド変数	2-22
3.8モニター変数	2-23
3.9誤差の割り付け	2-23
3.10制約条件	2-24
3.11出力時刻の指定	2-24
3.12その他の管理情報	2-24
3.13追加情報の出力	2-24
3.14方程式の付番	2-26
4.SPFファイルのフォーマット (ベクトル問題)	2-26
4.1全般	2-26
4.2座標軸の指定 (SPATIALキーワード)	2-26
4.3グリッドの定義 (REGIONキーワード)	2-27
4.4VECTORキーワード	2-27
4.5ベクトル変数のサブスクリプト	2-28
4.6ベクトル関数	2-30
5.SPADEによる計算の実行	2-31
5.1エラーメッセージ	2-31
6.出力	2-32
6.1.resファイル	2-32
6.2.samファイル	2-32
6.3.lisファイル	2-32
6.4.dbgファイル	2-33
7.例題 (スカラー問題)	2-33
8.例題 (ベクトル問題)	2-37
9.関数のリスト	2-39

10.キーワードのリスト .....	2-40
11.Implementationについて .....	2-45
参考文献 .....	2-45

## 第I部 理論編

### 1.SPADEの基本機能

SPADEは半explicitと呼ばれるクラスのDAEについての汎用ソルバーである。半explicitなDATAは、微分方程式と代数方程式群とを分離して取り扱うことが可能であるため、より一般的な全explicitな問題に比べて、比較的容易に解法することが可能である。この意味からは、SPADEの適用性にはある種の制約があることとなるが、半explicitな問題は広義拡散方程式や、より一般的な反応・拡散問題といった性能評価で対象とする問題の大部分を含むものである。また、SPADEは、他の汎用ソルバーと同じくインデックス0ないしは1のDAEを対象とする。以下に、DAEのインデックスという概念からはじめて、SPADEの機能の概要をまとめることとする。

### 2.DAEについての理論

#### 2.1DAEの一般形

全explicitな（最も一般的な）形式のDAEは次の様に書かれる。

$$F(\dot{x}, x, t) = 0 \quad (1)$$

但しここでドットは時間に関する微分を表すものとする。(1)式は一階の導関数のみを含むものであるが、常微分方程式論において良く知られている様に、高階の微分方程式は一階の常微分方程式の連立として表現できるため、このことによって一般性が失われることはない。また(1)式には位置に関しての微分は含まれていないが、本来の偏微分方程式を空間について差分化することにより、これを格子点についての複数の常微分方程式に展開することが可能であるため、この点も(1)式の一般性を制限するものとならない。

これに対して、SPADEが対象とする半explicitなDAEは、次の様なものである。

$$\dot{x} = f(x, y, t) \quad (2)$$

$$0 = g(x, y, t)$$

但し、 $f$  及び  $g$  は  $x, y, t$  についての連続関数とする。

ここでは、DAEは微分方程式群（(2)中上の形式）と代数方程式群（下の形式）とに区分され、更に変数は、微分変数  $x$  と代数変数  $y$  とに大別される。SPADE が(2)を対象とするのは、(2)式については適切な数値解法が見出されているのに対して、(1)式についての数値解法は多くの場合不安定なものとなることによる。

## 2.2 DAEのインデックス

一般に線型の常微分方程式のみから成る連立系では、任意の初期条件について滑らかな解が得られるが、代数的制約条件を含むDAEではこれは必ずしも正ではない。あるDAEでは、連立線型常方程式系と同様に常に滑らかな解が得られるが、他の場合では、ある初期条件から出発した解は有効時間のうち無限大に発散（解の爆発と呼ばれる）あるいは振動してしまう。このため、DAEのソルバーを作成する際には、常に滑らかな解が得られる様なDAEのクラスを予め明らかにしておくことが重要である。

このようなDAEの分類を与える概念がインデックスである。DAEのインデックスとは、この方程式系に含まれる全ての変数の一階の導関数が、 $x$  及び  $t$  の連続関数となる様にするための微分操作の回数として定義される。これをもう少し具体的に見るために、(2)式を考える。(2)式に於いて、DAEを構成する方程式が全て前者の形であり、

$$\dot{x} = f(x, t) \quad (3)$$

という形式であった場合、ここでは既に全ての $\dot{x}$  は $x$  と $t$ の連続関数として表現されており、上記の定義から、そのインデックスは0となる。

また、より一般の(2)式については、後者の式を時間微分することにより、

$$\dot{x} = f(x, y, t) \quad (4)$$

$$g_x(x, y, t) \dot{x} + g_y(x, y, t) \dot{y} = -g_t(x, y, t)$$

と書き換えられる。つまりここで、左辺の  $g_y$  が連続関数であれば、本来のDAE((2)式)で代数変数であった  $y$  についてもその導関数が  $x, y, t$  の連続関数で表現されることと

なり、この場合のインデックスは1である。

これに対して、 $g_y$ が不連続点を有する様な場合には、変数を変換して再度微分を行うことが必要となる。この操作によって新たに得られる関数が連続である場合には、このDAEのインデックスは2となる。以下、同様の操作を考えることによって、より高いインデックスのDAEが想定される。

SPADEは、全ての汎用DAEソルバーと同様、インデックス0及び1のDAEのみを解法するものである。

この制約のために、ユーザーは、SPADEに入力するDAEを予め外部でインデックス0あるいは1のものに変換しておくことが必要である。これは、原理的には上記の微分・代入操作を繰り返すことによって実施し得るが、適当な代入操作が常に見つかるとは限らない。そこで、これに代わるより現実的な方法が見出されている。この方法について、次に述べることとする。

### 2.3インデックスの降下と制約条件の安定化

2.2に述べた微分と代入操作の繰り返しによるインデックス降下を行った結果、本来のDAEである(2)式は、

$$\dot{x} = f(x,t) \quad (5)$$

という常微分方程式系に書き換えられる。然しながら、この過程で(2)式に含まれていた代数的制約条件は失われてしまい、代わりに、(5)式についての可能な初期条件の組み合わせのうちある一部のもののみが(2)式で対応することとなる。ここで、本来のDAEに含まれていた制約条件が、

$$0 = g(x,t) \quad (6)$$

という形に書き直されているものと仮定して、新たな変数を導入することによって、(5)式と(6)式とが連立された場合の解のみが現れる様にするというのがこの方法の主眼である。

このために、 $g_x$ の階数と同じ大きさを持つ変数ベクトル $\mu$ を導入して、新たなDAEと



して、

$$\dot{x} = f(x,t) + g_x^T \mu \quad (7)$$

$$0 = g(x,t)$$

を考える。ここで、 $x(t)$  が本来のDAEの解となることの必要十分条件は、ある時刻  $t$  における  $x = x(t)$  について  $g(x, t) = 0$  が成立することである。従って、(7)式の唯一の解は、 $x$  が(5)式の解であり、かつ  $\mu = 0$  であるものに限られることとなる。

この方法の具体例については、昨年度の研究報告書を参照されたい。なお、1.に述べた広義拡散方程式のニアフィールド問題の適用に対応するDAEはインデックス1であり、上記の操作は必要とはならない。

### 3.stiffな問題のための時間差分の方法

#### 3.1stiffな常微分方程式及びこれに対する解法の要件

常微分方程式系におけるstiffな問題とは、物理的にはタイムスケールの大きく異なる複数のプロセスが同時に含まれる様な現象として理解される。これを数学的に表現すると、次の様なものとなる[2]。

「DAEにおけるstiffな問題とは、(2)式に含まれるのヤコビアン行列

$$J_{ij}(x,y,t) = (\partial F_i / \partial x_j)(x,y,t) \quad (8)$$

が複数の固有値を持ち、それぞれの固有値の実部は負でその大きさが異なる様なものである。」

この様な問題は、それぞれ時間と共に減衰する複数の成分を持つが、固有値の大きさが大きく異なる時には、一つの成分が急速に減衰し、他はそのままとどまるという状況が生じる。

例えば、次の方程式

$$x_{(t)} = \begin{bmatrix} 998 & 1998 \\ -999 & -1999 \end{bmatrix} x_{(0)}, x_{(0)} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (9)$$

は良く知られた解析解

$$x_{(t)} = \begin{bmatrix} 2 & -1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \exp(-t) \\ \exp(-1000t) \end{bmatrix} \quad (10)$$

を有する。これを数値解法によって求める際には、対応するヤコビアン行列の固有値が-1000及び-1となる。つまり、精度を維持するためには $10^3$ 倍の速さで急減少する固有値-1000に対応した小さなタイムステップのサイズが求められ、かつ、現象のふるまいを見るためには固有値-1の解が十分減衰する様な長い期間の計算が必要となる。

このことは、通常陽解法を用いた場合には、計算するタイムステップ数が莫大なものとなることを意味する。

これに対して、陰解法は何らかの形で解の経時変化を内挿する関数の存在を前提として、過去の計算結果と時間的に整合的となる次回値 (predictor) を求め、これを方程式系の制約を満足する様に修正する (corrector) という predictor-corrector のスキームを用いるものである。このため、陰解法は stiff な問題に対して、より大きなタイムステップを採ることを可能にする。

陰解法を用いた stiff な問題の解析において、より高効率の処分を可能とするためには、可変タイムステップ可変オーダーのアルゴリズムをとることである。

まず、可変オーダーのスキームを用いることにより、(2)式中の  $f$ ,  $g$  が時間に関して非線型性の強いふるまいをした時、これに対応して高次の予測オーダー (内挿関数の次数と考えてよい) が自動的に選択され、合理的な (即ち極端に小さくない) タイムステップで解の精度を維持することができる。更に、可変タイムステップのスキームを用いることにより、解空間上の流線としての解のふるまいに即した処理が為される。即ち、単位時間当たりの変化が大きければ小さいタイムステップを選び (可変オーダーであることにより、極端に小さくはならない)、系が定常に近づけば大きいタイムステップが選ばれる。

つまり stiff な問題に最も適した数値解法とは、可変タイムステップ可変オーダーのアルゴリズムにおいても、predictor-corrector スキームが安定となる様な陰解法であるようなものであるということが出来る。

### 3.2 従来の陰解法

stiffな問題について適用可能な陰解法はGear等[4]によって1970年代初頭に開始された。BDF法の基本的な発想は、あるタイムステップにおける時間微分値をそのタイムステップからMステップ前までの間の計算値の線型和として与えることである。

$$dx_n/dt = (1/h) \sum_{j=1}^M b_j x_{n-j} \quad (11)$$

(h:タイムステップの大きさ)

(11)式は、そのままpredictorのスキームとして用いられる。

$$x^p = x_{n-1} + h dx_n/dt \quad (12)$$

次に、correctorとしては、上式の $x_n^p$ を初期推定値として、Newton反復を行うことによって修正値 $x_n^c$ が算出される。

このBDF法による解は、固定タイムステップの場合、最大5次まで安定であるということがGear[3]によって示されている。しかし、可変タイムステップのアルゴリズムにおいては、不安定性が生ずることも示されている[4]。この点は、前項で述べた様に、DAEの汎用的な数値解法としては致命的な短所であると言える。

この点を改良し、可変タイムステップ可変オーダーでも安定となる様にしたものが、ByrneとHindmarsyhによる改良BDF法である。

### 3.3改良BDF法[4]

#### 3.3.1 Predictor 及び Correctorの公式

$t=t_{n-1}$ 迄の解 $x_{n-j}(j=1, \dots, n)$ が得られているとして、 $q$ 次の予測オーダーで $x_n^p$ を推定するとする。この時、 $q$ 次の内挿多項式(自由度 $q+1$ )で、 $g$ 個の前回値を通り、かつ、 $t=t_{n-1}$ でその解の微係数がこの関数の傾きに一致する様なものが存在する。即ち、多項式を $\pi_{n-1(q)}$ とすると、

$$\begin{cases} \pi_{n-1(i)}(t_{n-i}) = x_{n-i}, i = 1, 2, \dots, q \\ \pi_{n-1}(t_{n-1}) = x_{n-1} \equiv f(x_{n-1}, t_{n-1}) \end{cases} \quad (13)$$

Predictorスキームを、ここでは、この様な多項式 $\pi_{n-1}$ を $\pi_n$ :

$$\begin{cases} \pi_n(t_{n-i}) = x_{n-i}, i = 0, 1, \dots, q \\ \pi_n(t_n) = x_n \equiv f(x_n, t) \end{cases} \quad (14)$$

に更新する問題と考える。そこで、多項式 $\pi_n$ を $\pi_{n-1}$ の単なる外挿として、

$$\begin{cases} x_n^p = \pi_{n-1}(t_n) \\ x_n = \pi_{n-1}(t_n) \end{cases} \quad (15)$$

を満足する様に設定する。勿論この $x_n$ は元の制約条件を満足するものではないために、Newton反復によるcorrectorスキームを経て $x_n^c$ に修正される。そして、この両者が近いものであれば、最終解はtime evolutionとして整合的であり、かつ制約条件を満たす真の解として受け入れられる。

以上では、一つの変数 $x$ について説明をしたが、全く同じことが $N$ 個の変数からなるベクトルについても成立する。以下、このより一般的な条件の下で説明を続ける。

さて、 $q$ 次のNordsieck列 $Z_{n-1}$ を考えてみる。

$$Z_{n-1} = x_{n-1}, h x_{n-1}, \frac{h^2}{2} x_{n-1}^{(2)}, \dots, \frac{h^q}{q!} x_{n-1}^{(q)} \quad (16)$$



とを示す。

明らかに、真のNordsieck列は $\pi_n$ に対応するものでなくてはならず、

$$\begin{cases} Z_n = \left[ x_n, h \dot{x}_n, \dots, \frac{h^q}{q!} x_n^{(q)} \right] \\ x_n^{(q)} \equiv \pi_n^{(q)}(t_n) \end{cases} \quad (19)$$

が成り立つ。

他方、 $Z_n^p$ については、

$$\begin{cases} Z_n^p = \left[ x_n^p, h \dot{x}_n^p, \dots, \frac{h^q}{q!} x_n^{p(q)} \right] \\ x_n^{p(q)} \equiv \pi_{n-1}^{(q)}(t_n) \end{cases} \quad (20)$$

である。そこで、

$$\Delta_n(t) = \pi_n(t) - \pi_{n-1}(t) \quad (21)$$

とし、 $x_n$ の予測誤差を $e_n$ とする；

$$e_n = x_n - x_n^p \quad (22)$$

この時、明らかに $\Delta_n(t)$ について、

$$\begin{aligned} \Delta_n(t_{n-1}) &= 0, \quad i = 1, 2, \dots, q \\ \Delta_n(t_n) &= e_n \end{aligned} \quad (23)$$

が成り立つことから、 $\Delta_n(t)$ は一意的に、

$$\Delta_n(t) = \prod_{i=1}^q [(t-t_{n-i})/(t_n-t_{n-i})] e_n \quad (24)$$

と定まる。また更に、

$$S = (t-t_n)/h, \quad \xi_i = (t-t_{n-i})/e_n \quad (25)$$

として、多項式 $\Lambda_n(s)$ を、

$$\Lambda_n(s) = \prod_{i=1}^q (1+s/\xi_i) \quad (26)$$

と定義すると、 $\Delta_n(t)$ は、

$$\Delta_n(t) = D_n(t_n+h_s) = \Lambda_n(s) e_n \quad (27)$$

として表される。

以上に基づきNordsieck列の予測誤差を算出すると、

$$\begin{aligned} Z_n - Z_w^p &= h^j \pi_n^{(j)}(t_n)/j! - h^j \pi_{n-1}^{(j)}(t_n)/j! \\ &= h^j \Delta_n^{(j)}(t_n)/j! \\ &= \Lambda_n^{(j)}(0) e_n / j! \\ &= \iota_j e_n \quad (j=0, 1, \dots, q) \end{aligned} \quad (28)$$

となる。但し、 $\iota_j$ は $\Lambda_n(s)$ のj次の項の係数とする。 $\iota = [\iota_0, \iota_1, \dots, \iota_q]$ とすると、(39)式

は、

$$Z_n = Z_n^p + e_n \quad (29)$$

と書き換えられる。

さて、次にcorrectorスキームを考える。(29)次のj=1の例は、

$$hX_n = hX_n^p + (X_n - X_n(0)) \iota_1 \quad (30)$$

となる。 $\iota_1 = \sum_{i=1}^q (1/\xi_i)$  であって、既知であり、また  $X_n = f(X_n, t_n)$  であることから、(30)式を

変形して、未知の(求めるべき)  $X_n^c$  を  $u$  とすると、

$$G_{(u)} = (u - X_n^p) - (h/\iota_1) [f(u, t_n) - x_n(0)] \quad (31)$$

となり、 $G_{(u)}=0$ の解が求められる  $X_n^c$  となる。これは、行列  $N$

$$N = I - [h/\iota_1]J \quad (32)$$

を用いたNewton法によって解くことができる。但し  $J$  は  $f$  のヤコビアン行列。

### 3.3.2 誤差管理とタイムステップサイズ及び予測オーダーの調整

3.3.1に述べたPredictor-Correctorの公式が、stiffな問題に対して真に効率的な解法となるためには、既に述べた様に、解のふるまいに対応してタイムステップサイズと予測オーダーが適宜自動的に調整されることが必要である。このためには、まず予測の誤差を定量化することが必要となる。

古典的なBDF法では、 $k$ 次の陰解法における局所予測誤差(あるタイムステップでの誤差)  $E_n(k)$  は、



$$E_n(k) = X_n + \frac{1}{b_n} \left[ h x_n + \sum_{i=1}^k b_{ni} x_{n-i} \right] \quad (33)$$

で与えられる。但しここで、 $x_j$ はcorrecton後の最終解とし $b$ は(11)式における係数とする。

(33)式を、3.3.1で用いた多項式 $\pi$ を用いて変形することにより、近似的に以下が成立することが、Byrne とHindmarsh[4]によって確かめられている。

$$E_n(q) = -1/t_1 \left[ 1 + \prod_2^q \left[ \frac{t_n - t_{n-i}}{t_{n-1} - t_{n-i}} \right] \right]^{-1} e_n + O(H^{q+2}) \quad (34)$$

$$E_n(q-1) = -[\xi_1, \xi_2 \dots \xi_{q-1} / t_1 (q-1)] (h^q y_n^{(q)} / q!) + o(H^{q+1}) \quad (35)$$

$$E_n(q+1) = \frac{-\xi_{q+1}}{(q+2)t_1(q+1) \left[ 1 + \prod_2^q \left[ \frac{t_n - t_{n-i}}{t_{n-1} - t_{n-i}} \right] \right]} (e_n - Q_n e_{n-1}) + O(H^{q+3}) \quad (36)$$

但し、 $Q_n = (C_n / C_{n-1}) (h / h_{n-1})^{q+1}$

$$C_n = \xi_1, \xi_2 \dots \xi_q \left[ 1 + \prod_2^q \left[ \frac{t_n - t_{n-i}}{t_{n-1} - t_{n-i}} \right] \right] / (q+1)!$$

ここで、 $H$ はタイムステップサイズの上限值であり、 $E_{n(q)}, E_{n(q-1)}, E_{n(q+1)}$ はそれぞれ $t=t_n$ での $q, q-1, q+1$ オーダー予測の誤差である。

以上の誤差公式に基づき、タイムステップサイズとオーダーの調整を以下の方法で行う。

まず、ユーザーが誤差許容範囲 $\varepsilon$ 、重み係数ベクトル $W = (W_1, \dots, W_n)^T$ 、及び $\varepsilon$ に対応

する期間  $S$  ( $\varepsilon/s$ が単位時間での誤差許容範囲となる。) を定めることが必要となる。ここで、次に、以下のテストを行うものとする。

$$h'_{q+i} = \eta_{q+i} \cdot h \quad (i = -1, 0, 1) \quad (38)$$

と修正することが必要と判断するものとする。この時、 $\eta_{q+i}$ は次を満たすことが十分条件である。

$$\eta_{q+i} = (\varepsilon / D_{q+i})^{1/(q+i+1)} \quad (39)$$

実際の計算においては、次の手順で上記の調整が行われる。

(i)  $q$ 次の予測で  $t=t_n$ のステップが終了して、満足すべき結果が得られた時、次に、

$q, q-1, q+1$ で次の計算を行った場合の誤差  $E_n(q), E_n(q-1), E_n(q+1)$ を(45)~(47)式により算出する。

(ii) (i)の結果に基づき  $\eta_{q+i} (i = -1, 0, 1)$ を算出する。

(iii)  $\eta_{q+i}$ の中で最大となる様な  $i$ を選定し、次回のタイムステップ  $h'$ を

$$h' = \max_i (\eta_{q+i}) \cdot h \text{ とする。}$$

以上の手順により、常に計算効率を最大とする様に、予測オーダーとタイムステップサイズが自動的に調整されることとなる。

SPADEコードは、このByrneとHindmarshの改良BDF法によりDAEを解法するものである。なお、このコード自体のアルゴリズムについては、次節を参照されたい。

## 4.SPADEの解法

本節では、まずSPADEの解法原理について述べ、次いで詳しい手順をまとめる。

### 4.1解法の原理

$f_i$ 及び $g_j$ をそれぞれ $i$ 番目の常微分方程式と $j$ 番目の代数方程式とし、 $x$ 及び $y$ をそれぞれ微分変数及び代数変数とした時、(2)式を次の様に表すことができる。

$$\begin{aligned} \dot{x}_i &= f_i(x, y, t) \\ 0 &= f_j(x, y, t) \end{aligned} \tag{40}$$

SPADEは、上記のDAEのstiffな方程式が含まれる場合、即ちタイムスケールが全く異なる複雑のプロセス（前節の例における振り子の運動と半径方向の振動、あるいは速い化学反応と遅い化学反応等）が同時に含まれている場合にも安定で高効率の解法として、可変タイムステップ可変オーダーのBDFを用いている。

SPADEにおける数値解法の手順は、以下の通りである。

- (a)(16)式の形式でDAEを定義する。
- (b)関数 $f_i, g_j$ 及び変数 $x_i, y_j$ を指定する。
- (c)全ての変数の初期値を与える。
- (d)全ての変数の時間に関する微係数の初期値を与える。（代数変数については推定値）
- (e)初期条件(c),(d)が(a)で定義したDAEを満足することを確認する。
- (f)はじめのタイムステップの大きさ $h=h_0$ を指定する。
- (g) $x_i$ 及び $y_j$ の現在値 ( $t=t$ ) に基づき、 $t=t+h$ での値 $x_p$ 及び $y_p$ を予測する。  
(predictorスキーム)
- (h) $x_p$ 及び $y_p$ を初期推定値としてNewton Raphson反復を行い、元のDAEを満足する解 $x_c$ 及び $y_c$ を求める。（correctorスキーム）
- (i)-1 もしNewton Raphson反復が収束した場合、 $\text{predictor}(x_p, y_p)$ と $\text{corrector}(x_c, y_c)$ とを比較する。これら二つが十分近いものであった時には、この比較結果に基づき次回のタイムス

テップのためのファクター $\eta$ を算出する。

- (i)-2 もしNewton Raphson反復が収束しない場合、必要な措置をとり計算をやり直す。
- (j) オーダーを1つ下げた場合のタイムステップ次回値とオーダーを1つ上げた場合のタイムステップ次回値とを計算し、(i)-1の結果と併せ、タイムステップ最大となる様なオーダーを選択する。
- (k) 新たなタイムステップと新たな（もし必要であれば）オーダーを設定し、次々回のステップについての(g)を行う。

各ステップの詳細は次項で述べるものとする。なお、可変タイムステップ可変オーダーのスキームを用いることの利点は以下である。

- (i) 可変オーダーのスキームにより、もし与えられた $f_i, g_i$ が時間に関して非線型性の強いものであった時、これに対応して高次の予測が自動的に選定され、精度が保たれる。
- (ii) 可変タイムステップのスキームにより、解空間上の流線としての解のふるまいに即した処理が為される。即ち、単位時間当たりの変化が大きければ小さいタイムステップを選び、系が定常に近づけば大きいタイムステップが選ばれる。

#### 4.2 数値解法の概要

SPADEは、ByrneとHindmarshによって考案されたNordsieck列のアプローチを用いている。即ち、未知変数  $\mathbf{u} = (\mathbf{u}, \dot{\mathbf{u}})$  を直接取り扱うかわりに、 $q$ 次のNordsieck列

$$\mathbf{Z} = [\mathbf{u}, h\dot{\mathbf{u}}, \frac{h^2}{2}\ddot{\mathbf{u}}, \dots, \frac{h^q}{q!}\mathbf{u}^{(q)}]$$

を実質的な未知数として解法を組み立てる。但し、 $\mathbf{Z}$ は $n \times q+1$ の行列であり、 $q$ が当該タイムステップにおける解法のオーダーである。

このNordsieck列を用いることによって、前節で説明した改良BDF法が以下の様な数値解法として具体化される。以下、簡単のため前出の手順のうち(g)からはじめることとする。

[ステップ(g)]

$t_{n-1}$ までの結果が得られている時に、次の $t_n$ のpredictionを得るためには、Nordsieck列を用いて次の計算を行う。

$$Z_n^p = A_{(q)} Z_{n-1} \quad (41)$$

ここで、上添字はpredictionに対応するものとし、 $A_{(q)}$ は $q+1$ 次のパスカル三角行列である。

例えば $q=2$ の時、

$$\begin{bmatrix} u_n^p \\ h\dot{u}_n^p \\ \frac{h^2}{2}\ddot{u}_n^p \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 2 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} u_{n-1} \\ h\dot{u}_{n-1} \\ \frac{h^2}{2}\ddot{u}_{n-1} \end{bmatrix}$$

このステップで注意すべき点は、代数変数についても同様の操作によりpredictionが行われるということである。このことについてはすぐ後に説明を加える。

[ステップ(h)]

ステップ(g)の結果、即ち $u_n^p$ を初期推定値として、Newton Raphson反復を行うのがこのステップである。この反復解法に用いられる行列 $N$ は、以下の様に定義される。

$$N_n = I - \gamma_n J_n \quad (\text{微分変数について}) \quad (42)$$

$$N_n = \gamma_n J_n \quad (\text{代数変数について}) \quad (43)$$

但し、 $J_n$ は $f$ ないしは $g$ のヤコビアン行列とする。

上式において代数変数については単位行列が含まれていない。これは、元のDAEにおいて代数変数についての時間微分項が含まれていないことから明らかであろう。

さて、 $N_n$ が得られた後には、 $u_n^p$ を初期推定値としてNewton Raphson反復を実施する。

現在のSPADEでは各タイムステップにおいて5回までの反復が許容されている。

Newton Raphson反復の収束判定は、以下の二つのクライテリアにより行われる。

$$\rho = \left[ \frac{\|u_n^{p(k)} - u_n^{p(k-1)}\|}{\|u_n^{p(1)} - u_n^{p(0)}\|} \right]^{1/k} \quad (44)$$

$$\xi = \frac{\rho}{1-\rho} \|u^k - u^{k-1}\| \quad (45)$$

ここでもし、 $\rho > 0.9$ あるいは $\xi > 0.3$ のうち少なくともどちらか一方が生じた場合には収束判定は"No"とされる。

[ステップ(i)-1]

Newton Raphson反復が収束した場合、次には収束結果である $u_n^c$ と初期推定値 $u_n^p$ との比較がなされる。 $u_n^c$ はDAEの制約条件を満足し、 $u_n^p$ は解の経時変化を外挿するものであるが、真の解 $u_n$ はこの両者の性質を有するものでなくてはならない。このため、 $u_n^c$ と $u_n^p$ とは互いに近い値であることが求められるためである。

またここで、代数変数 $y$ はこの比較検定の対象からはずされる。といのも、 $y$ についての導関数 $\dot{y}$ は元のDAEの形式から言って厳密な意味を持たないためである。つまり、微分変数 $x$ についての比較検定の結果が"yes"であれば、 $y_n^p$ の値によらず $y_n^c$ が真の解 $y_n$ として採用される。

SPADEでは、 $u_n^p$ と $u_n^c$ との差異にユーザー指定のある上限を設けることによってこの検定を行う。そして、検定結果が"no"であれば、次の(i)-2ステップと同様の措置がとられる。

[ステップ(i)-2]

Newton Raphson反復が収束しなかった場合、あるいは $u_n^c$ と $u_n^p$ との差が大きい場合には、通常タイムステップのサイズを低減することが試みられる。しかし、SPADEでは計算効率を向上するために、以下の多段階の措置を用意している。これは、SPADEが行列Nを毎回計算している訳ではないために、使われているNが古すぎる可能性があるためである。タイムステップの低減に先立って、Nを更新することにより収束を得ることが試みられる。

- (i) Nの定義式中にある $\gamma$ の値が、最後にNを計算した時から大きく変わっているか否かを調べる。もし変わっている場合には、新たな $\gamma$ の値を用いてNを計算し直す。
- (ii)  $\gamma$ の変化が大きくないか、(i)によっても収束が得られなかった場合、Jの再計算が行われる。
- (iii)(i)及び(ii)にもかかわらず、未だ収束が得られない場合には、タイムステップの大きさを半分にしてステップ(g)が再び行われる。

#### [ステップ(j)]

Newton Raphson反復が収束し、 $u_n^c$ と $u_n^p$ とが十分近いものであった時、 $u_n^c$ は真の解 $u_n$ として認められる。そして、次に行うことは、次回のタイムステップにおけるタイムステップサイズと、予測オーダーを定めることである。というのも、現在の予測のオーダーが次のタイムステップにおいても最適のものか否かは不明であるためである。

この操作は、具体的には、現在のオーダー $q$ 、及びこれを低下、増加させた $q-1, q+1$ のそれぞれのオーダーについて、次のタイムステップサイズを得るためのファクター $\eta$ 、 $\eta_{up}$ 、 $\eta_{down}$ を計算し、次回のタイムステップサイズが最大、つまり計算効率が最大となる様なオーダーを見出すことによって為される。

いずれのオーダーが採用されても、対応する次回の計算のためにはあらたなステップサイズ $\eta h$ に対応してNordsieck列の更新を行う必要がある

$$\eta h = h \cdot \max[\eta, \eta_{up}, \eta_{down}] \quad (46)$$

また、オーダーの変更を伴う場合には、Nordsieck列の次数も変える必要がある。

オーダーを増加する際には、テイラー展開の $q+1$ 次の項を0と仮定して、Nordsieck列の末尾に0列ベクトルを追加することによってこの変形は為される。しかし、オーダーを低

下す場合には、他式の次数の項も含めて見直し新たな $q-1$ 次までのテイラー展開が $q-1$ 個の既計算値を内挿する様に調整するという少し複雑な操作が必要となる。

既に述べた様に、このステップ(j)は非線型のstiffな方程式を高効率で処理する上で最も重要な部分である。

#### [出力]

出力にあたっては、計算結果に対しての若干の調整を必要とする。これは、SPADEの可変タイムステップのスキームのために、ユーザー指定の時刻において計算結果が得られることは必ずしも保証されないためである。そこで、SPADEは、前回値のNordsieck列が、即ち各成分の和によって表されるテイラー展開が内挿としての条件を満足しているものであることを用い、ユーザー指定の時刻における推定値を求めてこれを出力する。



## 第II部 実践編

### 1.概要

SPADEの使用にあたっては、まず問題をDAEシステムに沿った形に定式化しなければならない。ベクトル量を含むのであれば境界条件などを用いてベクトル量をスカラー量のセットに変換することが必要である。

次に問題をSPADEの入力フォーマットに合わせて作成する。すなわちSPADEの入力ファイルであるSPF(SPAAE Problem Format)ファイルを作成する。

### 2.問題の定式化

SPFファイルにおける変数、定数、方程式等の記述は、シンボリックに行う。SPFファイルは普通のテキストファイルであり、ユーザーは適当なエディタを用いてSPFファイルを作成する。

### 3.SPAAEファイルのフォーマット (スカラー問題)

SPFファイルはキーワードと引数のリストから成っている。キーワードは大文字を用いる。引数は何行にも渡ることもある。引数の最後には;が付かななければならない。\*以降はコメントとなる。引数が不要でキーワードだけの場合でもキーワードの後には;が必要である。一意に決まるのであればキーワードは短くすることができるがあまり使用しない方がよい。

#### 3.1名称の指定

定数や変数などのシンボリック量は、SPFファイルにおいてユニークな名前を持たなければいけない。許される命名はC言語と同様である。(アルファベットで始まり間にスペース、ピリオド、カンマをいれてはいけない等)。大文字と小文字は区別される。既にSPAAEに組み込まれている関数名は、シンボリック量の名称には使用できない。

アンダーラインも使用できるが、ベクトル表現で用いるのでスカラー量に用いることは勧めない。

宣言のしていないシンボリック量は代数あるいは微分の変数とみなされる。

### 3.2 演算子と関数

数学的表現はCやFortranと同じであるが、べき乗には^を使う。

( ) は関数の引数や演算手順を指定するのに使われる。 , は引数列の区切りに使用する。

### 3.3 定数

SPFファイルでは数値を直接明記することもできるが、シンボル名に代入した方がよい。これには、キーワードCONSTANTが用いられる。1つのCONSTANTキーワードで1つの定数しか定義できない。同一SPFファイル内で、先にCONSTANT宣言している変数その後に出てくるCONSTANTで用いる事もできる。

SPADEは単位や次元の概念をもたないため、ユーザーの責任において問題を無次元に定式化しなければならない。その際に用いる変換ファクタとして適切な定数を用いる。以下に例を示す。

```
CONSTANT length=12.5; *計算域の長さ
CONSTANT Npoints=11; *評価点数
CONSTANT dx=length/(Npoints-1) *評価点間の長さ
CONSTANT pi=4*arctan(1); *円周率
```

### 3.4 時間変数

時間変数のデフォルト名はtである。キーワードTIMEを用いて名前を変更できる。それはSPFファイルにおいて1度だけ可能である。

### 3.5 方程式系

方程式はキーワードで記述される。微分方程式は以下のように表される。

$\frac{dx}{dt} = -e^{-y}$  は、EQUATION d(x,t)=-exp(-y);のよう表され、

$\frac{da_4}{dt} = \frac{a_5 - a_3}{2 \cdot dx}$  は、EQUATION d(a\_4,t)=(a\_5-a\_3)/(2\*dx); と表される。

また代数は、

EQUATION X=Y;

EQUATION cos(x\*t/w)=sqrt(alpha); のように表される。

=を省略したら=0とみなす。

EQUATION x-y; はEQUATION x=y; と同じである。

微分方程式では、d(x,t)などは等号のすぐ左側になければならない。

EQUATION d(x,t)-2=0; \*この書き方は不正

EQUATION d(x,t)=2; \*この書き方は正しい

### 3.6初期条件

方程式で用いるすべての変数に対して、初期値が必要である。初期値はキーワードINITIALで宣言する。初期値にはside変数が入ってはいけない。(同一ファイル内で事前にINITIALで、初期化されているside変数ならよい)

時間変数の初期値はデフォルト0であるが、INITIALで変えることもできる。その場合、他のINITIALキーワードよりも前に於かなければならない。

INITIAL宣言の例を示す。

INITIAL x=100;

INITIAL y=k\*t-x\*x;

INITIAL t=-100; \*計算は-100秒から始める

### 3.7サイド変数

サイド変数はキーワードSIDEで宣言される。サイド変数は補助的表現として方程式内で用いられる。サイド変数は個別に計算されることはなく、微分値あるいは代数値によって決まる。サイド変数を用いることによりSPFファイルは単純化され、見やすくなり、ま

た実行時間も低減する。

サイド変数の宣言はスカラーの場合はSIDEキーワード、ベクトル変数の場合はVECTORキーワードを用いる。サイド変数の値はタイムステップ毎に出力ファイルに書かれる。

他の変数に対するINITIAL宣言で用いられるサイド変数はその前にINITIAL宣言をしなければならない。それ以外ではSPADEが微分値や代数值の初期値から自動的に初期化するため、INITIAL宣言は不要である。

サイド変数の使用例を示す。

```
SIDE termD=aD*kD*hsmooth(D)*((A*B*B*C*C/KD)-1);
EQUATION d(A,t)=...+termD+...;
EQUATION d(B,t)=...+termD+...;
```

### 3.8 モニタ変数

モニタ変数もサイド変数のように出力ファイルに出力される。サイド変数との違いは成功したタイムステップでのみ評価されることである。そのタイムステップの始めに他の使用可能な変数を用いて評価される。そのタイムステップの予測値は使用されない。サイド変数は計算に使用されるのに対し、モニタ変数は他の変数の値を用いて計算を行い出力するだけである。方程式の中でも用いられない。モニタ変数は他のモニタ変数によって定義されることもある。

使用例を示す。

```
SIDE flux=...;
MONITOR flux_max=max(flux,flux_max); *最大値を記録する
INITIAL flux_max=0;
```

### 3.9 誤差の重み付け

WEIGHTキーワードは異なる変数に異なる重み付けをするのに用いる。デフォルトの重みはどの変数も1.0である。大きな重みを指定された変数は、エラー評価に対する寄与が大きく、小さな重みの変数は寄与が小さい。

重みは実行中に変わる。時間依存量の重みが変わったら、その次のステップから重みが変わる。しかるべき所で重みが与えられなければSPADEは警告を発生し、1.0の重み付け

をする。

使用例を示す。

```
WIGHT a=10.0*ascale;  
WIGHT x=1/x;    *注-重みはxと共に変化する
```

### 3.10制約条件

いろいろな問題に対し、すべてのタイムステップで答えを満足させるために、付加的条件を定義する。例えば、濃度を表わす変数は必ず負にはならない。SPADEはこのような条件をCONSTRAINTキーワードを用いて設定できる。それぞれのタイムステップでSPADEはタイムステップ毎にCONSTRAINTで規定された条件が満足されているかどうかチェックする。もし、満足されてなければそのタイムステップは除外されタイムステップを粉にして再計算を行う。このようなチェックは当該タイムステップを実行するかどうかを決める前に先立って行われる。条件付けは不等式で表される。等号は使えない。この制約条件による予測値の修正は行われない。答の有効性のチェックとして追加的チェックがなされるだけである。

使用例を示す。

```
CONSTRAINT x_0>=0;  
CONSTRAINT t*t>=y_1>=sqrt(t);  
CONSTRAINT max(x_0,x_1,x_2,x_3)<=x_4;
```

### 3.11出力時刻の指定

SPADEは時間連続に解を出す、この解はユーザーの指定したタイミングで出力される。指定出力時間の最後まで実行すると計算は終了する。幾つかの方法で出力時間を指定できる。

- ・STEPキーワードで明示的に出力タイムステップを昇順に指定できる。  
例 STEP 10,25,50,100,
- ・(MINTIME,MAXTIME,NSTEP)の組み合わせと(MINTIME,MAXTIME,ARITHSTEP)の組み合わせで出力タイミングを特定できる。

MINTIME 10; MAXTIME 100; NSTEP 10; と指定すると出力タイミングは  
10,20,30,40,50,60,70,80,90,100 になる。

MINTIME 0.1; MAXTIME 0.5; ARITHSTEP 0.1; と指定すると出力タイミングは  
0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5 になる。

・幾何級数的出力ステップの指定（正の数のみ）

MINTIME 10; MAXTIME 160; GEOMSTEP 2; と指定すると出力タイミングは  
10,20,40,80,160 になる。

### 3.12 その他の管理情報

エラーの許容範囲をEPSSTEPキーワードで指定する。デフォルトは $10^{-6}$ である。  
精度と計算スピードに影響してくる。最適な値は、変数値の大きさ（これは重み付けによ  
り変更できる）と計算精度をどのくらいにするかにより決まる。

最初のタイムステップは、INITSEPキーワードで指定する。デフォルトは1.0。  
もし最初のタイムステップが大きすぎるのであれば自動的に調整する。最適な値を指定す  
ることにより計算スピードが向上する。

SPADEは、デフォルトとして微分変数の誤差のみを監視し、代数変数については無視  
するように設定されている。代数変数の誤差を監視する必要がある場合には、ALGERR  
キーワードを用いればよい。

SPADEのソルバ（逆行列計算）は、デフォルトでは通常的一般形の行列に対するもの  
であるが、（偏微分方程式の差分形で頻出する）まばらなマトリックス（対角成分近傍に  
のみ非零の成分が現れるもの）については、SPARSEキーワードにより、より効果的な解  
法が適用される。これにより多くの容量を必要とする問題でもスピードとメモリを劇的に  
節約できる。最近のバージョンではまばらなマトリックスがデフォルトになっている。

NSYMBOLキーワードでシンボルの数を制限できる。これによりメモリが節約できる。  
もしSPFファイル内に記述されているシンボル数より小さな値を指定した場合でもSPADE  
は必要最小限のメモリを確保する。

以上5つのキーワードは1回だけ宣言できる。

### 3.13 追加情報の出力

LISTキーワードを指定した場合、SPADEは各出力時間毎にサイド変数を含むすべての  
変数の名称とその値を、.lstファイルに出力する。

DEBUGキーワードを指定した場合は、計算ステップ毎にタイムステップの長さ、エラーの最も大きかった変数の名称とエラー値などの情報が、.dbgファイルに出力される。

### 3.14方程式の付番

EQUATIONキーワードで指定された方程式の数と変数の数は同数でなければならない。数が合わない場合、SPADEはその旨のメッセージを発生し、計算を停止する。SPADEを使用するに当たり、式と変数の数を一致させることが困難を伴うことをユーザーは注意しなければならない。

## 4.SPFファイルのフォーマット (ベクトル問題)

### 4.1全般

一次元あるいは二次元問題を扱うために、ベクトル量を使用することができる。

ユーザーはシンボル量をベクトル値であると宣言し、一次元あるいは二次元のグリッドに関連づける。SPADEはベクトル値シンボルをスカラーシンボルのセットに置き換える。どんな表現でもベクトル値ならばグリッド点毎におきかえられる。ユーザーは境界条件などを用いてベクトル表現に任意の制限を加えることができる。

このベクトル表記を使うコツは、ベクトル量とはスカラー量のセットの略記にすぎないことを理解することである。

そして、それらのスカラー量は互いに独立であり、他のスカラー量と同じ扱いができる。これは強力な特徴である。たとえば、特別なベクトル量的一方を代数的変数として、もう片方を定数として扱うことができる。

### 4.2座標軸の指定 (SPATIALキーワード)

ベクトル値の格子の設定を行う前にユーザーは格子の軸をなす幾つかの空間的シンボル量を宣言しなければならない。これらの変数はSPATIALを用いて宣言しなければならない。変数に名前をつけるのはもちろんのこと、軸上に幾つグリッド点があるか、またその値は何かをユーザーは決めなくてはならない。それにはUNIFORMオプションとLISTオプションの二通りの方法がある。

```
CONSTANT xmin=0; CONSTANT xmax=1; CONSTANT NX=11;  
SPATIAL x, UNIFORM, xmin, xmax, NX;
```

この結果x軸は 0.0, 0.1, 0.2, ..., 1.0 となる。

```
SPATIAL y, LIST, 0, 1, 2, 4, 8, 16;
```

任意の位置にY軸を取る。(昇順に指定しなければならない)

空間的変数はREGIONキーワードと共にグリッドを規定するために用いられるが、方程式中にも明示的に表れる。後者の場合はベクトル値定数として用いられる。

SPATIALキーワードは、REGIONキーワードより前になければならない。

#### 4.3グリッドの定義 (REGIONキーワード)

グリッドはREGIONキーワードで宣言された変数で定義される。REGIONは、VECTORキーワードの対象となる領域に名前をつけ、幾何的構造を記述する。現状一次元と二次元空間のみSPADEはサポートしている。

複数の領域を定義することもできる。以下に使用例を示す。

```
SPATIAL x, UNIFORM, 0, 1, 11;  
SPATIAL y, UNIFORM, 0, 5, 6;  
REGION one, CART1D, x;  
REGION two, CART2D, x,y;
```

REGIONキーワードは、SPATIALキーワードの後でVECTORキーワードの前に位置しなければならない。one,twoなどは変数ではなく識別のための単なるラベルである。

#### 4.4VECTORキーワード

前もってREGIONで定義されている領域においてVECTORはある特別なシンボルをベクトル値とする。SPADEはベクトル値をスカラーのセットに置き換える。これらのスカラーの名は、グリッドポイントのインデックスをベクトルシンボル名にくっつけたものである。例えば、一次元領域「one」におけるベクトルをSXとすると次のように宣言する。



VECTOR SX[one];

そして派生するスカラー変数は、SX\_0, SX\_1, SX\_2, ...となる。

二次元領域の場合は、SX\_0\_3となり、これはX軸の最初の点とY軸の4番目の点からなるベクトルを表す。これらのスカラー変数名はSPADEアウトプットファイルに出力される。これらの添字付名前は入力ファイルで直接使用することもできるが、あまり使用しない方がよい。ベクトルの形で使う方がよい。下に例を示す。

ある表現 (EQUATION, CONSTANT, SIDE, CONSTRAINTなどの引数となる) がある領域に関係するベクトル値を含む場合、SPADEは自動的にその表現自体がベクトル値であると仮定し、その領域内のすべての点を保持する。ただしユーザーが特定のベクトル量のうちある特定の部分を指定することもできる。

ベクトル値を有する量は、すべてVECTORを用いて宣言しなくてはならない。したがって、もしVECTOR宣言をつけ忘れてしまったらSPADEは関係する量をスカラーと仮定する。例えば、

VECTOR a[grid];

EQUATION a=b; \*a(x)=b を意味する bはスカラー

VECTOR a[grid];

VECTOR b[grid];

EQUATION a=b; \*a(x)=b(x) を意味する a,bは共にベクトル

#### 4.5ベクトル変数のサブスクリプト

ベクトル量の後にあるカギカッコ [] でくくられた表現をベクトル添字という。

SPADEは3つの異なるベクトル添字の形式を許している。これら3つの異なる型は、しばしば組み合わせて用いられる。添字が2つ以上ある場合は[]内でカンマで区切る。

添字の1番目の型は特定のグリッド位置における値に関するものであり、スカラーに立ち戻るときに効果的である。(同様に二次元から一次元に戻るときも効果的である。) この型では左辺に空間的変数、右辺に定数(あるいは定数表現)という等式で添字が成り立っている。例えば、次のような場合である。

SPADE x, UNIFORM, 0, 9, 10;

```

SPATIAL y, UNIFORM, -1, 1, 3;
REGION grid1, CART2D, x, y;
VECTOR a[grid1]; } ベクトル変数の宣言
VECTOR b[grid1]; }

```

以上のように宣言すると、次のように使用することができる。

```

INITIAL a[x=0,y=0]=5;      *(0,0)原点には値5がある
CONSTRAINT a[y=1]>x;      *yは1(xはすべて)の点に限る
EQUATION b[x=0]=a;        *x=0(yはすべて)の点においてb=aである
CONSTANT b[x=0,y=1]=a;    *bが(0,1)のところでのみb=a

```

最後の例から分かるように、1点で決まるベクトル量は任意のグリッド位置、他のサイド変数、代数や微分の変数などにおいて定数になりうる。

2つ以上のベクトル量を用いるときに、それぞれの量に独自の添字がつくことは問題ない。

```

CONSTANT b[x=0,y=1]=a; }
CONSTANT b[x=0]=a[y=1]; } これら3つは同等である。
CONSTANT b=a[x=0,y=1]; } (0,1)でb=aであることを意味する。

```

もし、定義範囲を超えた添字が表れたら最も近いものが使われる。

```

CONSTRAINT b[x=2.1, y=-3]=0;    この場合b[2,-1]が適用される

```

一次元の場合はもっと簡単な書き方ができる。

```

SIDE a[0,0]=0; *a[x=0,y=0]=0と同じである。
CONSTANT a[ymin]=y; *注意! これはa[x=ymin]=yを意味する。

```

添字の二番目の型は次元を減らすことなくグリッドの一部に制限を加えることである。この型は不等号を含んでおり、普通は1つ以上の空間変数を含む。

SIDE  $a[x>5,y<1]=b$ ; \*5より大きいxと1より小さいyすべてに適応される。

これらの条件付き添字は単独表現と組み合わせることができる。これらの条件はグリッド点上では常に真であり、また条件付添字はすべての式に適応する。

これらの条件付表現はユーザーの指定に応じて複雑になっていく。

以上の2つの型を組み合わせると次のようになる。

EQUATION  $b[y=-1,2\leq x<5]=0$ ; \*xが2から5の間かつyが-1の所で0である。

EQUATION  $b[x<0,x>2]=0$ ; \*条件を満足させるxはないので無視される。

EQUATION  $b[\cos(x+7)>\sin(y*y)]=0$ ; \*文法上はエラーはない。

添字の3つ目の型は左辺に単独空間変数を右辺に同じ空間変数を含む式からなる添字である( $x=x+dx$ 等)。カレントのグリッドポイントからのオフセットを用いており、また空間的導関数の構築にも必要である。

CONSTANT  $dx=1$ ;

EQUATION  $b[0<x<9]=(a[x=x+dx]-a[x=x-dx])/(2*dx)$ ;

これは $b=\frac{da}{dx}$ を意味する。

前述2つの型と異なり、この型は一次元ベクトル量に対してのみ使用できる。

この第三の型では、境界での振る舞いに注意しなければならない。もし、 $dx$ がグリッドの間隔で、 $x$ が $\max$ の $x$ だった場合 $a[x=x+dx]$ はグリッドからはみ出してしまい1番近い有効な値をとるため $a[x]$ と同じになる。このため制限を追加したり、境界条件の扱いのために表記を分けたりする。

セクション8にこれら3つの型を用いた例を示している。

添字はベクトル値にのみ適応される。微分式では左辺にベクトル添字は出てこない。

#### 4.6ベクトル関数

SPADEには2つの特殊な組み込み関数がある。これらはベクトル表現においてのみ意味がある。 $d$  (<ベクトル表現>、<空間変数>)は1階空間微分を意味し、一方、 $d^2$  (<ベクトル表現>、<空間変数1><空間変数2>)は2階微分を表わす。2番目

の2つの空間変数は同じになることもある。

```
SIDE adx=d(a,x);
```

```
EQUATION 0=d2(b,x,x)+d2(b,y,y)-2*d2(a,x,y);
```

以上のような、カレントポイントの両側の点を用いる微分式化は端の点には適応できないため、これらの表現を使用した場合、両端の点（2階微分の場合はその内側も）は未定義となる。

```
EQUATION b[xmin<x<xmax]=a([x=x+dx]-a[x=x-dx])/(2*dx);
```

```
EQUATION b=d(a,x);
```

 この2つの式は同等である。

## 5.SPADEによる計算の実行

SPADE実行の際は、問題の名称を引数としてSPADEに渡す。

これはSPFファイル名の拡張子(.spf)を除いたものと同じである。SPFファイルはカレントディレクトリに置く。出力ファイルもカレントディレクトリにできる。同じ名前の問題を再度実行した場合は出力ファイルはすべて上書きされる。

### 5.1エラーメッセージ

SPFファイル入力処理中あるいは計算中にエラーが生じた場合、SPADEは処理を中止し、エラーメッセージを表示する。以下にエラーメッセージとその原因、対処方法を示す。

- ・ Must supply a problem name:

コマンドラインに問題の名称が与えられていない。

- ・ Too many variables:

方程式の数より変数の方が多い。原因としては変数名のミスタイプ、CONSTANT宣言をせずに何らかの定数を使用している、方程式が足りないなどが考えられる。ベクトル変数を使用することにより方程式の数を減らすこともできる。SPFファイルを修正し、再実行する。

- ・ Too many equations:

変数の数より方程式の数の方が多い。上記参照。

- ・ Failure to make progress(CONTROL), could not restart:  
ある時間経過後の解を出すことができず、リスタートルーチンもその時間の解を見つけることができなかった。これはその時点における解が存在しないか、解くのが困難になってきたことを意味する。DEBUGキーワードを用いて再計算を行うと計算中にSPADE内で何が起きているかが、.dbgファイル出力されるので、その情報を基にEPSSTEPの値を変えてみる。
- ・ Failure to make progress(CONTROL), too many restarts:  
SPADEが規定しているリスタート回数だけリスタートを行っても計算できなかった。上記と同じ対処をする。
- ・ SPADEは実行されたが、結果の出力がなかった。  
出力タイムステップの指定が、誤っていることが考えられる。指定されていないか、指定されていても、初期時間より前の時間を指定していないかSPFファイルを調べる。

## 6.出力

SPADEは内容の異なるファイルを幾つか出力する。

### 6.1 .resファイル

SPADEのメイン出力ファイルである。初期処理情報および各出力時間毎の値の一覧表を作成する。画面に表示されるエラーメッセージも出力される。

一覧表には、代数計算の解、微分計算の解、サイド変数、モニタ変数の値が出力される。

### 6.2 .samファイル

出力タイムステップの処理が正常終了する毎に、.samファイルにそのステップの各値（.resファイルの一覧表と同じ値）が出力される。その形式はSAM GUIで読み込めるようになっている。

### 6.3 .lisファイル

SPFファイル内で、LISTキーワードが用いられている場合は、.lisファイルが作成される。出力内容は、.resファイルの一覧表と同じものであるが、一行に出力タイムステップ、変数名、値が並んでいるため値を調べるに便利である。

#### 6.4 .dbgファイル

SPFファイル内で、DEBUGキーワードが用いられている場合は、.dbgファイルが作成される。SPADE内で生じていることが記録されるため、SPFの修正に役立つ。

#### 7.例題（スカラー問題）

次に示すSPFファイルは化学反応モデルを解くものである。\*の後の文は理解を深めるためのコメントであり、必ずしも必要では無い。ここで扱っている化学反応問題については、参考文献[1]を参照のこと。

```
*
* SPADE control file example for "Dow Chemicals" test problem
* MJW 4/9/93
*
* Output timesteps
MINTIME 0.0;
MAXTIME 6.0;
NSTEP 7;
*
* Constants
CONSTANT k1=21.893; * Rate constant kg/gmole/hr
CONSTANT k_1=2.14E9; * Rate constant 1/hr
CONSTANT k2=32.318; * Rate constant kg/gmole/hr
CONSTANT k3=21.893; * Rate constant kg/gmole/hr
CONSTANT k_3=1.07E9; * Rate constant 1/hr
CONSTANT K1=7.65E-18; * Equilibrium constant gmole/kg
CONSTANT K2=4.03E-11; * Equilibrium constant gmole/kg
CONSTANT K3=5.32E-18; * Equilibrium constant gmole/kg
*
* Constraints: concentrations must be positive
CONSTRAINT u_1=>0;
CONSTRAINT u_2=>0;
CONSTRAINT u_3=>0;
CONSTRAINT u_4=>0;
CONSTRAINT u_5=>0;
CONSTRAINT u_6=>0;
CONSTRAINT u_7=>0;
CONSTRAINT u_8=>0;
CONSTRAINT u_9=>0;
CONSTRAINT u_10=>0;
```

```

*
* Eps step value
EPSSTEP 1.0E-9;
*
* Initial timestep
INITSTEP 1.0E-9;
*
* Time variable name:
TIME t;
*
* Side variables giving reaction rates
*
SIDE rate_1=k1*u_2*u_6;
SIDE rate_2=k2*u_2*u_8;
SIDE rate_3=k3*u_4*u_6;
SIDE rate_4=k_3*u_9;
SIDE rate_5=k_1*u_10;
*
* Equations for differential and algebraic variables
*
* Group 1: Dynamic equations for reactions;
*
EQUATION d(u_1,t)=-rate_2;
EQUATION d(u_2,t)=-rate_1+rate_5-rate_2;
EQUATION d(u_3,t)=rate_2+rate_3-rate_4;
EQUATION d(u_4,t)=-rate_3+rate_4;
EQUATION d(u_5,t)=rate_1-rate_5;
EQUATION d(u_6,t)=-rate_1-rate_3+rate_5+rate_4;
*
* Group 2: Hydrogen balance;
*
EQUATION u_7=-0.0131+u_6+u_8+u_9+u_10;
*
* Group 3: Equilibrium Reactions;
*
EQUATION u_8=K2*u_1/(K2+u_7);
EQUATION u_9=K3*u_3/(K3+u_7);
EQUATION u_10=K1*u_5/(K1+u_7);
*
* Initial time value
INITIAL t=0.0;
*
* Initial values for differential and algebraic variables
INITIAL u_1=1.5776;
INITIAL u_2=8.32;
INITIAL u_3=0;
INITIAL u_4=0;
INITIAL u_5=0;
INITIAL u_9=0;
INITIAL u_10=0;
INITIAL u_6=0.0131;
INITIAL u_7=0.5*(-K2+sqrt(K2*K2+4.0*K2*1.5776));
INITIAL u_8=0.5*(-K2+sqrt(K2*K2+4.0*K2*1.5776));

```

このファイルをテキストエディタで作成後、"dow.spf"の名前でセーブし、SPADEで実行させる。その方法は、ハードウェアによって異なる。

UNIXマシンおよびMS-DOSならば、spade dow と入力する。

MacintoshならばSPADEアイコンをダブルクリックし、表示されるダイアログボックスのコマンドラインにdow と入力し、OKボタンをクリックする。

この場合dow.spfファイルは、SPADE実行ファイルと同じディレクトリに存在しなければならない。

SPADEの実行が終了すると計算結果が、dow.resファイルに書かれる。

以下にその内容を示す。

```
5 side variables have been defined as follows:
Side variable 1: rate_2=( 32.318 * u_2 ) * u_8
Side variable 2: rate_1=( 21.893 * u_2 ) * u_6
Side variable 3: rate_3=( 21.893 * u_4 ) * u_6
Side variable 4: rate_4= 1.07e+09 * u_9
Side variable 5: rate_5= 2.14e+09 * u_10
Output timesteps: 0 1 2 3 4 5 6
Input equation array:
Equation 1: d(u_1)/dt= ( - rate_2 )
Equation 2: d(u_2)/dt= ( ( 2.14e+09 * u_10 ) - rate_2 ) - rate_1
Equation 3: d(u_3)/dt= rate_2 + ( rate_3 - rate_4 )
Equation 4: d(u_4)/dt= rate_4 - rate_3
Equation 5: d(u_5)/dt= rate_1 - rate_5
Equation 6: d(u_6)/dt= ( ( ( - rate_1 ) - rate_3 ) + rate_5 ) + rate_4
Equation 7 (algebraic constraint) 0= u_7 - ( ( ( u_6 + -0.0131 ) + ...
Equation 8 (algebraic constraint) 0= u_8 - ( 4.03e-11 * ( u_1 / ( ...
Equation 9 (algebraic constraint) 0= u_9 - ( 5.32e-18 * ( u_3 / ( ...
Equation 10 (algebraic constraint) 0= u_10 - ( 7.65e-18 * ( u_5 / ...
User constraints:
Constraint number      1   u_1 >= ZERO
Constraint number      2   u_2 >= ZERO
Constraint number      3   u_3 >= ZERO
Constraint number      4   u_4 >= ZERO
Constraint number      5   u_5 >= ZERO
Constraint number      6   u_6 >= ZERO
Constraint number      7   u_7 >= ZERO
Constraint number      8   u_8 >= ZERO
Constraint number      9   u_9 >= ZERO
Constraint number     10   u_10 >= ZERO
Starting solution is as follows:
Variable u_1 Initial value 1.5776 Initial derivative -0.00214396
Variable u_2 Initial value 8.32 Initial derivative -2.38831
Variable u_3 Initial value 0 Initial derivative 0.00214396
Variable u_4 Initial value 0 Initial derivative 0
Variable u_5 Initial value 0 Initial derivative 2.38616
Variable u_6 Initial value 0.0131 Initial derivative -2.38616
Variable u_10 Initial value 0 Initial derivative 2.28935e-12
Variable u_7 Initial value 7.97352e-06 Initial derivative -1.19308
Variable u_8 Initial value 7.97352e-06 Initial derivative 1.19308
Variable u_9 Initial value 0 Initial derivative 1.43047e-15
                rate_1      rate_2      rate_3      rate_4      rate_5
                u_1          u_2          u_3          u_4          u_5
```



	u_6	u_7	u_8	u_9	u_10
0	2.3862	0.002144	0	0	0
0	1.5776	8.32	0	0	0
0	0.0131	7.9735e-06	7.9735e-06	0	0
1	1.6282	0.35603	0.13281	0.57223	1.1913

...etc (results truncated)

この出力には初期値およびSPADE自身が作成する初期値も含まれる。計算結果は、.resファイルの最後に表形式で書かれる。この表の最初には変数名が並んでおり、その後で変数名の並びの順にその値が出力タイムステップ毎に出力される。ただし、各行の先頭の数字は出力ステップの時間である。これらの値は、.samファイルにも出力される。

.resファイルに出力される初期処理情報は画面上にも表示される。また、計算が正常終了した場合は、計算実行に関する統計値およびelapsedタイムも画面上に表示される。

(以下参照)

Number of successful timesteps:	2889
Number of rejected timesteps:	2139
Total number of Jacobian evaluations:	1724
Total number of LU decompositions :	2057
Total number of function evaluations:	12190
Total number of restarts :	0
Calculation time (s) :	71
Total run time (s) :	72

## 8.例題 (ベクトル問題)

一次元問題におけるベクトル表現の例を示す。結果ファイルの内容は、スカラー問題の場合と同様であるため、ここでは触れない。

この問題は、参考文献2のケース1に相当するものであり、次の拡散系を扱っている。  
(境界条件使用)

$$w = uv$$

$$U = u + w$$

$$V = v + w$$

$$U_t = U_{xx}$$

$$V_t = V_{xx}$$

```
*
* new_tcl.spf - version of the test case 1 SPF file written to use
* the vector extensions to the SPF file format
*
* JAW 13/10/93
*
SPARSE; * Use sparse matrix solver
EPSSTEP 1.0E-5; * Absolute error tolerance
INITSTEP 1.E-9; * Initial time step
*
* Specify output times
*
CONSTANT tmin=0;
CONSTANT tmax=0.1;
MINTIME tmin;
MAXTIME tmax;
ARITHSTEP 0.01;
*
* Specify the 1D region
*
CONSTANT xmin=0;
CONSTANT xmax=1;
CONSTANT NX=11;
SPATIAL x,UNIFORM,xmin,xmax,NX;
REGION one,CART1D,x;
*
* Calculate grid spacing
*
```

```

CONSTANT dx=(xmax-xmin)/(NX-1);
*
* Declare vector quantities
*
VECTOR u[one];
VECTOR v[one];
VECTOR w[one];
VECTOR V[one];
VECTOR U[one];
*
* Declare governing equations
* Two of these use SPADE's built-in spatial derivative operator

EQUATION w=u*v;
EQUATION d(U,t)=d2(U,x,x);
EQUATION d(V,t)=d2(V,x,x);
EQUATION U=u+w;
EQUATION V=v+w;
* Boundary conditions:
EQUATION U[x=xmin]=2;
EQUATION U[x=xmax]=2;
EQUATION V[x=xmin]=0;
EQUATION V[x=xmax]=2;
*
* Specify initial values
*
INITIAL u[x<xmax]=2;
INITIAL v[x<xmax]=0;
INITIAL w[x<xmax]=0;
INITIAL U=2;
INITIAL V[x<xmax]=0;
INITIAL V[x=xmax]=2;
INITIAL u[x=xmax]=1;
INITIAL v[x=xmax]=1;
INITIAL w[x=xmax]=1;

```

## 9.関数のリスト

SPADEが現状サポートしている関数のリストを示す。

<u>Function</u>	<u>Description</u>	<u>Notes</u>
abs(x)	absolute value	
arccos(x)	inverse cosine	result in radians
arcsin(x)	inverse sine	result in radians
arctan(x)	inverse tangent	result in radians
cos(x)	cosine	x in radians
cosh(x)	hyperbolic cosine	
d(a,x)	first spatial derivative	central difference
d2(a,x,y)	second spatial derivative	central difference
exp(x)	$e^x$	
heavy(x)	Heaviside step	derivative always zero
hsmooth(x,eps)	smoothed Heaviside	see below
log(x)	$\log_e(x)$	
log10(x)	$\log_{10}(x)$	
min(x1,x2,...,xN)	minimum of 2 or more values	see below
max(x1,x2,...,xN)	maximum of 2 or more values	see below
sin(x)	sin	x in radians
sqrt(x)	$\sqrt{x}$	
switch(x,a,b)	switch function	see below
tan(x)	tan	x in radians
tanh(x)	hyperbolic tangent	

注)

1.スムージングされたHeaviside step関数hsmooth(x,eps)は次のように定義される。

$$\begin{aligned} hsmooth(x, eps) &= 0 \quad (x < 0) \\ &= 1 - e^{-x^2/eps^2} \quad (x \geq 0) \end{aligned}$$

epsの範囲内でステップ関数はスムーズに立ち上がることができる。数値計算を行う場合、スムージングを行わないHeaviside step関数heavy(x)を用いるとSPADEの負担が大きくなる。したがって、適切なEPS値が求まる場合は、hsmooth(x,eps)を用いた方がよい。SPADEがhsmoothに対して、微分を行う場合、epsは定数として扱う。

2.minおよびmax関数は、引数の中の最小値および最大値を返す。SPADEは引数が幾つ存在しても正しい最小値および最大値を評価するが、微分計算の場合は、引数が2つのものしか微分できない。そのため、EQUATIONでこれらの関数を用いる場合は（サイド変数を通じて使用する場合も含めて）引数は2つにしなければならない。

3.関数switch(x,a,b)は、 $x \leq 0$ の場合にaを返し、それ以外の場合にbを返す。どちらの場合も使用しない引数は評価しない。そのため、次に示すようにレンジエラーを防ぐことにも使用できる。

```
switch(x,0,sqrt(x))
```

## 10.キーワードのリスト

SPADEが現状サポートしているキーワードのリストをアルファベット順に示す。

### ALGERR

Format: ALGERR;

If this optional keyword is present the prediction errors on both the algebraic and differential variables will be taken into account in determining if a step has been successful. If it is absent only the error on the differential variables will be used.

ARITHSTEP - see MINTIME

### CONSTANT

Format: CONSTANT <constant name> = <expression>;

This keyword defines a named constant and gives it a fixed numeric value. <expression> can be a number or a constant expression. If a constant is to appear in the definition of a second constant it must be defined first in the input file.

Examples:

```
CONSTANT epsilon=1.0E-8;
```

```
CONSTANT pi=arctan(1)*4;
```

```
CONSTANT lambda=4/pi; * Allowed because pi is defined first
```

## CONSTRAINT

Format: CONSTRAINT <conditional expression>;

This keyword defines a condition which must be satisfied by the predicted values of the variables before a timestep is accepted.

Examples:

CONSTRAINT a>0;

CONSTRAINT c>=b>log(e);

## DEBUG

Format: DEBUG;

If this optional keyword is present debugging output will be written to a file with an extension .dbg. If it is absent no such debug information will be written.

## EPSSTEP

Format: EPSSTEP <expression>;

This keyword sets the value of the  $\epsilon_{step}$  parameter used to control the absolute error tolerance of the solver.

## EQUATION

Format:

EQUATION <expression>;

EQUATION <expression1>=<expression2>;

EQUATION <derivative> =<expression>;

This keyword is used to define equations for differential or algebraic variables.

Examples: EQUATION x-y=z;

EQUATION (y\*k)-a=0;

EQUATION x-y-z;

EQUATION d(x,t)=-cos(t\*x);

GEOMSTEP - see MINTIME

## INITIAL

Format: INITIAL <variable name>=<expression>;

This keyword defines an initial value for an algebraic or differential variable. <expression> may be a numeric constant or a general expression, provided initial values for any variables (including side variables) present in the expression have already been defined with their own INITIAL keyword.

Examples:

INITIAL x=0.1;

INITIAL y=-cos(k\*x); \* OK if k is a constant, for example

## INITSTEP

Format: INITSTEP <expression>;

This keyword sets the initial timestep to be used by the solver.

## LIST

Format:LIST;

This keyword instructs SPADE to create an additional output file (with extension .lis) containing the same numerical results as the .res file in a more verbose form.

MAXTIME - see MINTIME

## MINTIME

MAXTIME

NSTEP

ARITHSTEP

## GEOMSTEP

Format:

MINTIME <first output time>;

MAXTIME <last output time>;

NSTEP <Number of output times>;

ARITHSTEP <arithmetic step spacing>;

GEOMSTEP <geometric step spacing>;

These keywords used in appropriate combinations allow a regularly-spaced set of output times to be specified.

MONITOR Format:

MONITOR <monitor variable>=<expression>;

This keyword declares a new monitor variable and specifies its defining expression. The monitor variable will appear in the SPADE output files.

Example:

MONITOR tmax=switch(a-amax,tmax,t);

MONITOR amax=max(a,amax);

INITIAL amax=0;

INITIAL tmax=t;

NSTEP - see MINTIME

## NSYMBOL

Format: NSYMBOL <expression>;

This optional keyword may be used to provide SPADE with a rough estimate of the total number of symbolic quantities (variables and constants) that appear in the SPF file. Vector quantities should be multiplied by the number of grid points over which they are defined. If this estimate is provided and is roughly correct it will enable SPADE to reduce the total amount of memory it uses.

## REGION

Format: REGION <region name>, <region type>, <spatial variable 1> [, <spatial variable 2>];

where <region type> is either CART1D or CART2D.

This keyword declares a new spatial grid with a selected geometry and one or more spatial variables to define its axes. At present there are two types of geometry, 1D cartesian (CART1D) and 2D cartesian (CART2D). Other types may be added in future. The 1D geometry requires a single spatial variable and the 2D geometry requires two. The region name is just a label used in subsequent VECTOR keywords. The REGION keyword must appear after the SPATIAL keywords which define the spatial variables it uses and before any VECTOR keywords for that region.

## SIDE

Format: SIDE <side variable> = <expression>;

This keyword declares a symbolic quantity as a side variable and gives its defining expression. The defining expression may contain any symbolic quantities including other side variables. However, to avoid recursive definition any side variables which appear in the expression must be defined earlier in the file. (For this purpose, vector side variables are considered to be defined in the order in which their VECTOR keywords appear. Scalar side variables are considered to be defined in the order in which their SIDE keywords appear.) Examples:

```
SIDE u=sqrt(a*a+b*b+c*c);
```

```
SIDE logu=log(u); * allowed because u is declared first
```

## SPARSE

Format: SPARSE;

If this optional keyword is present a sparse matrix solver will be used to carry out inversion of the Newton iteration matrix. If it is absent a full matrix solver will be used. The full solver is slower and typically uses more memory, so the sparse solver is recommended for all but the smallest problems.

## SPATIAL

Format: SPATIAL <name>, UNIFORM, <first value>, <last value>, <Number of points>;

or SPATIAL <name>, LIST, <point 1>, <point 2>, ..., <point N>;

This keyword declares a new spatial variable and specifies the set of values it takes. The UNIFORM option gives an evenly-spaced set of values with specified start and end values (for example, SPATIAL x,0,1,11; would give 11 x values 0, 0.1, 0.2, ..., 1.0). The LIST option gives an explicit list of values. These must be in increasing order or SPADE will report an error.



## STEP

Format: STEP <output time 1>, <output time 2> ..., <output time N>;

This keyword specifies one or more output timesteps. These times should be in ascending order. This keyword may appear more than once in the control file. If the keyword appears more than once (to allow very long lists to be split) then all times must be in ascending order. This keyword takes precedence over the other methods of specifying output timesteps (using MINTIME, MAXTIME etc).

Example:

```
STEP 1000,2000,5000,10000;
```

## TIME

Format: TIME <variable name>;

This keyword specifies the name of the time variable. This keyword must appear no more than once in the control file. If it does not appear, the time variable is assumed to be called "t".

Example:

```
TIME tprime;
```

## VECTOR

Format: VECTOR <variable name>[<region name>;

This keyword declares that a given symbolic quantity is vector-valued over the grid associated with the given region.

## WEIGHT

Format: WEIGHT <variable name>=<expression>;

This keyword assigns a given weight to a given variable. If this keyword is omitted for one or more variables, or if the weight expression cannot be evaluated for any reason, the weights for the variables concerned default to 1.0. Weights will vary throughout a run if any time-varying quantities appear in their definition.

## 11.Implementationについて

SPADEは、ANSI標準Cに準拠しており、IBM PC(DOSおよびWindows)、Apple MACおよびUnix(SunおよびSilicon Graphics)上での動作を確認している。

SPADE内部では方程式および変数の数に制限は無いが、コンピュータのメモリサイズによっては、数に制限が加えられる。

### 参考文献

- [1] M. Caracotsios and W.E. Stewart, *Sensitivity Analysis of Initial Value Problems with Mixed ODEs and Algebraic Equations*, Computers and Chemical Engineering 9, 359, 1985.
- [2] R. Thomas, *Geochemical Test Cases 1 to 4*, Intera Report IM3830-1, 1993.

## 付録 3 SPFファイルの例

```

*****
*
*           Part 1 全般  General
* (Block 1.1) 計算制御パラメータ Control info.
* (Block 1.2) 基本定数 Fundamental Constants
* (Block 1.3) 差分グリッド Gridding
* (Block 1.4) ユーティリティボックス Utility BSt
*   1.4.1 反応速度  $\mu$  reaction rate (1/y)
*   1.4.2 分配係数 Kd distribution coefficients (m3/g)
*   1.4.3 沈澱物の溶解限度 solubility of solid
*   1.4.4 コロイドの溶解限度 solubility of colloid
*   1.4.5 可動コロイドに対するトラップコロイドの割合
*   1.4.6 地下水流量 ground water flow rate through decomp zone (m3/y)
*
*           Part 2 リザーバー reservoir
* (Block 2.1) 基本定数 Fundamental constants
* (Block 2.2) 計算用サイド変数 Side Variables for Calculation
* (Block 2.3) ダミー変数 ( $\alpha, \beta, \delta$ ) Dummy Variables
* (Block 2.4) ガラスの溶解速度および固相の溶解・沈澱速度
* (Block 2.5) 出力用サイド変数 Side Variables for Output
* (Block 2.6) 方程式 Evolution Equations
* (Block 2.7) 初期条件及び制約条件 Initial Conditions & Constraints
*
*           Part 3 オーバーパック及びベントナイト Overpack & Bentonite
* (Block 3.1) ベクトル変数の宣言 Definition of Vector Variables
* (Block 3.2) 計算用サイド変数 Side Variables for Calculation
* (Block 3.3) ダミー変数 ( $\alpha, \beta, \delta$ ) Dummy Variables
* (Block 3.4) 出力用サイド変数 Side Variables for Output
* (Block 3.5) 方程式 Evolution Equations
*   3.5.1 溶解・沈澱速度 precipitation rate of solid
*   3.5.2 支配方程式 Governing equation
* (Block 3.6) 初期条件及び制約条件 Initial Conditions & Constraints
* (Block 3.7) 境界条件 boundary condition
*
*           Part 4 ゆるみ域 Decompressed zoneE
* (Block 4.1) 基本定数 Fundamental constants
* (Block 4.2) 計算用サイド変数 Side Variables for Calculation
* (Block 4.3) ダミー変数 ( $\alpha, \beta, \delta$ ) Dummy Variables
* (Block 4.4) 固相の溶解・沈澱速度
* (Block 4.5) 出力用サイド変数 Side Variables for Output
* (Block 4.6) 方程式 Evolution Equations
* (Block 4.7) 初期条件及び制約条件 Initial Conditions & Constraints
*
*****
*-----*
*modification history
*-----*
*prototype (version 0.1) developed by AN, 5/12/94
*decay term rescaled (version 0.2) by HT, 26/12/94
*scaling revised and notation changed (version 1.0) by HT, 13/1/95
*shadow functions for environmental evolutions implemented (version 1.1)
*   by HT, 20/1/95
*terminator for quitting calculations after depletion defined (version 1.2)
*   by HT, 23/1/95
*
*****
*           Part 1 全般  General
*****

```

```

*
*-----
* (Block 1.1) 計算制御パラメータ Control info.
*-----
*
DEBUG;
LISTFILE;          * .lis ファイル出力 generate list output
SPARSE;            * まばらなマトリックス use sparse matrix solver
ALGERR;           * 含代数予測エラー include errors on algebraic variables
CONSTANT epsstep=1e-5; * 許容誤差範囲値 value for absolute error tolerance
EPSSTEP epsstep;  * 許容誤差範囲の設定 set absolute error tolerance
INITSTEP 1.e-10;  * 初期経過時間 initial timestep
CONSTANT EPS=1e-5; * ステップ関数ジャンプの堅さ smoothness of step function
CONSTANT ascaleg=1e-5;
CONSTANT ascalen=1e-5;
*
WEIGHT UN2=1/(UN2+US1N2X);
WEIGHT UN3=1/(UN3+US1N3X);
WEIGHT UN1=1/(UN1+US1N1X);
WEIGHT URsN2=1/(URsN2+URsStN2X);
WEIGHT URsN3=1/(URsN3+URsStN3X);
WEIGHT URsN1=1/(URsN1+URsStN1X);
WEIGHT UDzN2=1/(UDzN2+UDzStN2X);
WEIGHT UDzN3=1/(UDzN3+UDzStN3X);
WEIGHT UDzN1=1/(UDzN1+UDzStN1X);
WEIGHT vRsamSi=exp(-KdcayN2*t);
WEIGHT vamSi=exp(-KdcayN2*t);
WEIGHT vDzamSi=exp(-KdcayN2*t);*
*
* 出力のタイミング output timing
STEP 100 ,126 ,158 ,200 ,251 ,316 ,398 ,501 ,631 ,794 ,
1000 ,1260 ,1580 ,2000 ,2510 ,3160 ,3980 ,5010 ,6310 ,7940 ,
10000 ,12600 ,15800 ,20000 ,25100 ,31600 ,39800 ,50100 ,63100 ,79400 ,
100000, 1.26e5, 1.58e5, 2.00e5, 2.51e5, 3.16e5, 3.98e5, 5.01e5, 6.31e5, 7.94e5,
1.00e6, 1.26e6, 1.58e6, 2.00e6, 2.51e6, 3.16e6, 3.98e6, 5.01e6, 6.31e6,
6.90e6, 7.06e6, 7.22e6, 7.38e6, 7.54e6, 7.70e6, 7.86e6, 8.02e6, 8.18e6, 8.34e6,
8.50e6, 8.58e6, 8.66e6, 8.74e6, 8.82e6, 8.90e6, 8.98e6, 9.06e6, 9.14e6, 9.22e6,
9.30e6, 9.34e6, 9.38e6, 9.42e6, 9.46e6, 9.50e6, 9.54e6, 9.58e6, 9.62e6, 9.66e6,
9.70e6, 9.72e6, 9.74e6, 9.76e6, 9.78e6, 9.80e6, 9.82e6, 9.84e6, 9.86e6, 9.88e6,
9.90e6, 9.91e6, 9.92e6, 9.93e6, 9.94e6, 9.95e6, 9.96e6, 9.97e6, 9.98e6, 9.99e6,
1.00e7;
*-----
* (Block 1.2) 基本定数 Fundamental Constants
*-----
*
CONSTANT Ddissolv=0.00946*3; * 溶解の拡散係数 diffusivity of dissolved (m2/y)
CONSTANT Dcolloid=0.000946*3; * コロイドの拡散係数 diffusivity of colloid (m2/y)
*
CONSTANT pi=4*arctan(1); * 円周率
CONSTANT rresrv=0.2; * リザーバー半径 outer reservoir radius
CONSTANT rbent=1.5; * 中心からベントナイト外側までの距離 outer bentonite radius
CONSTANT rdecmp=3.0; * 中心からゆるみ域外側までの距離 outer decomp zn radius
CONSTANT rglass=0.2; * 廃棄物の半径 outer glass radius (m)
CONSTANT h=2.47; * 廃棄物高さ height of cylinder (m)
CONSTANT SAresrv=2*pi*h*rglass+2*rglass*rglass*pi; * 廃棄物表面積 surface area
CONSTANT SAglass=SAresrv*10; * ガラス表面積 outer surface area of resrv (m2)
CONSTANT SABent=2*pi*h*rbent; * ベントナイト表面積 (m2)
CONSTANT VolRs =pi*rresrv*rresrv*h; * リザーバー体積 volume of resrv (m3)

```

```

CONSTANT ThalfN1=433;          * N1-ZN1 の半減期 Half-life of N1-ZN1
CONSTANT KdcayN1=log(2)/ThalfN1; * N1-ZN1 の崩壊定数 decay constant of N1-ZN1
CONSTANT ThalfN2=2.14e6;      * N2-ZN2 の半減期 Half-life of N2-ZN2
CONSTANT KdcayN2=log(2)/ThalfN2; * N2-ZN2 の崩壊定数 decay constant of N2-ZN2
CONSTANT ThalfN3=1.592e5;     * N3ZN3 の半減期 Half-life of N3ZN3
CONSTANT KdcayN3=log(2)/ThalfN3; * N3ZN3 の崩壊定数 decay constant of N3ZN3
CONSTANT Poro0=0.33; * 空隙率初期値
*
CONSTANT Gmass = 405000*ascalg;
    * ガラス固化体重量 initial mass of glass (g)
CONSTANT ZN1=241;          * N1-ZN1 の原子量 atomic weight of N1-ZN1 (g/mol)
CONSTANT InvmasN1 = 55.4*ascaln ;
    * N1-ZN1 のガラス固化体中重量 initial mass of N1 (g)
CONSTANT InvmolN1 = InvmasN1/ZN1; * N1-ZN1 の初期モル数 initial mol of N1 (mol)
CONSTANT ZN2=237;          * N2-ZN2 の原子量 atomic weight of N2-ZN2 (g/mol)
CONSTANT InvmasN2 = 836*ascaln ;
    * N2-ZN2 のガラス固化体中重量 initial mass of N2 (g)
CONSTANT InvmolN2 = InvmasN2/ZN2; * N2-ZN2 の初期モル数 initial mol of y (mol)
CONSTANT ZN3=233;          * N3ZN3 の原子量 atomic weight of N3ZN3 (g/mol)
CONSTANT InvmasN3 = 0.246*ascaln ;
    * N3ZN3 のガラス固化体中重量 initial mass of U (g)
CONSTANT InvmolN3 = InvmasN3/ZN3; * N3ZN3 の初期モル数 initial mol of U (mol)
CONSTANT ZSi=28;          * Si-28 の原子量 atomic weight of Si-28
CONSTANT InicentSi=7.8e-4*ascalg; * Si の初期モル濃度 initial Si concent (mol/l)
CONSTANT URsSi0 = InicentSi*ZSi*1000; * Si 濃度初期値 initial Si concent (g/m3)
CONSTANT USi0 = InicentSi*ZSi*1000; * Si 濃度初期値 initial Si concent (g/m3)
CONSTANT UDzSi0 = InicentSi*ZSi*1000; * Si 濃度初期値 initial Si concent (g/m3)
CONSTANT vamSi0 =600000*ascalg; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
CONSTANT vDzamSi0=600000*ascalg; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
*
SIDE Poro=0.33;          * 空隙率 porosity (-)
SIDE Dens=2.7e6;          * 密度 density (g/m3)
SIDE Kdn1T = min(KdcayN1*t, 218); * KdcayN1*t は 218 以下に抑える
*
*-----
* (Block 1.3) 差分グリッド Gridding
*-----
*
CONSTANT npoint=20;      * 評価点数 number of grid point (overpack & bentonite)
CONSTANT dr=(rbent-rresrv)/(npoint-1); * 座標間隔 grid spacing (m)
SPATIAL rrr, UNIFORM, rresrv, rbent, npoint; * 空間の定義 (円筒座標) define space
REGION ovrebent, CART1D, rrr;          * 使用する空間名 define region name
*
*-----
* (Block 1.4) ユーティリティボックス Utility BSt
*-----
*
* 1.4.1 反応速度  $\mu$  reaction rate (1/y)
* ( Si )
VECTOR MyuamSi[ovrebent]; * アモルファスシリカ am silica in overpack & bentonite
SIDE MyuRsamSi =100; * リザーバ中のアモルファスシリカ am silica in reservoir
SIDE MyuamSi =100*ascalg; * アモルファスシリカ am silica in overpack & bentonite
INITIAL MyuamSi =100; * アモルファスシリカ am silica in overpack & bentonite
SIDE MyuDzamSi =100; * ゆるみ域中のアモルファスシリカ am silica in decompressed zone
INITIAL MyuDzamSi=100; * ゆるみ域中のアモルファスシリカ am silica in decompressed zone
VECTOR MyuFeSi[ovrebent]; * 珪化鉄 FeSi in overpack & bentonite
SIDE MyuRsFeSi =100; * リザーバ中の珪化鉄 FeSi in reservoir
SIDE MyuFeSi =100; * 珪化鉄 FeSi in overpack & bentonite

```

```

INITIAL MyuFeSi =100 ; * 珪化鉄 FeSi in overpack & bentonite
SIDE MyuDzFeSi =100; * ゆるみ域中の珪化鉄 FeSi in decompressed zone
INITIAL MyuDzFeSi=100; * ゆるみ域中の珪化鉄 FeSi in decompressed zone
*
CONSTANT MO = 10; * 安定物の反応速度
CONSTANT MH =100; * 準安定物の反応速度
*
( N1-ZN1 )
VECTOR MyuStN1[ovrebent]; * 安定N1 StN1ZN1 in overpack & bentonite
SIDE MyuRsStN1 =MO; * リザーバ中の安定N1 StN1ZN1 in reservoir
SIDE MyuStN1 =MO; * 安定N1 StN1ZN1 in overpack & bentonite
INITIAL MyuStN1 =MO; * 安定N1 StN1ZN1 in overpack & bentonite
SIDE MyuDzStN1 =MO; * ゆるみ域中の安定N1 StN1ZN1 in decompressed zone
INITIAL MyuDzStN1=MO; * ゆるみ域中の安定N1 StN1ZN1 in decompressed zone
VECTOR MyuMsN1[ovrebent]; * 準安定N1 MsN1ZN1 in overpack & bentonite
SIDE MyuRsMsN1 =MH; * リザーバ中の準安定N1 MsN1ZN1 in reservoir
SIDE MyuMsN1 =MH; * 準安定N1 MsN1ZN1 in overpack & bentonite
INITIAL MyuMsN1 =MH; * 準安定N1 MsN1ZN1 in overpack & bentonite
SIDE MyuDzMsN1 =MH; * ゆるみ域中の準安定N1 MsN1ZN1 in decompressed zone
INITIAL MyuDzMsN1=MH; * ゆるみ域中の準安定N1 MsN1ZN1 in decompressed zone
*
( N2-ZN2 )
VECTOR MyuStN2[ovrebent];* 安定N2 StN2ZN2 in overpack & bentonite
SIDE MyuRsStN2 =MO; * リザーバ中の安定N2 StN2ZN2 in reservoir
SIDE MyuStN2 =MO; * 安定N2 StN2ZN2 in overpack & bentonite
INITIAL MyuStN2 =MO; * 安定N2 StN2ZN2 in overpack & bentonite
SIDE MyuDzStN2 =MO; * ゆるみ域中の安定N2 StN2ZN2 in decompressed zone
INITIAL MyuDzStN2=MO; * ゆるみ域中の安定N2 StN2ZN2 in decompressed zone
VECTOR MyuMsN2[ovrebent];* 準安定N2 MsN2ZN2 in overpack & bentonite
SIDE MyuRsMsN2 =MH; * リザーバ中の準安定N2 MsN2ZN2 in reservoir
SIDE MyuMsN2 =MH; * 準安定N2 MsN2ZN2 in overpack & bentonite
INITIAL MyuMsN2 =MH; * 準安定N2 MsN2ZN2 in overpack & bentonite
SIDE MyuDzMsN2 =MH; * ゆるみ域中の準安定N2 MsN2ZN2 in decompressed zone
INITIAL MyuDzMsN2=MH; * ゆるみ域中の準安定N2 MsN2ZN2 in decompressed zone
*
( N3ZN3 )
VECTOR MyuStN3[ovrebent];* 準安定N3 MsN3ZN3 in overpack & bentonite
SIDE MyuRsStN3 =MO; * リザーバ中の安定N3 StN3ZN3 in reservoir
SIDE MyuStN3 =MO; * 安定N3 StN3ZN3 in overpack & bentonite
INITIAL MyuStN3 =MO; * 安定N3 StN3ZN3 in overpack & bentonite
SIDE MyuDzStN3 =MO; * ゆるみ域中の安定N3 StN3ZN3 in decompressed zone
INITIAL MyuDzStN3=MO; * ゆるみ域中の安定N3 StN3ZN3 in decompressed zone
VECTOR MyuMsN3[ovrebent];* 安定N3 StN3ZN3 in overpack & bentonite
SIDE MyuRsMsN3 =MH; * リザーバ中の準安定N3 MsN3ZN3 in reservoir
SIDE MyuMsN3 =MH; * 準安定N3 MsN3ZN3 in overpack & bentonite
INITIAL MyuMsN3 =MH; * 準安定N3 MsN3ZN3 in overpack & bentonite
SIDE MyuDzMsN3 =MH; * ゆるみ域中の準安定N3 MsN3ZN3 in decompressed zone
INITIAL MyuDzMsN3=MH; * ゆるみ域中の準安定N3 MsN3ZN3 in decompressed zone
*
* 1.4.2 分配係数 Kd distribution coefficients (m3/g)
*
( Si )
VECTOR KdSi[ovrebent];* Si の分配係数 Si distribution coefficients (ml/g)
SIDE KdSi =0.0; * Siの分配係数
INITIAL KdSi =0.0;
SIDE KdRsSi =0.0; * リザーバ中のガラス Si in reservoir
SIDE KdDzSi =0.0; * ゆるみ域ガラスの分配係数
INITIAL KdDzSi=0.0; * ゆるみ域 (Si) の分配係数
SIDE KdGrSi =0.0; * 地下水 (Si) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)
INITIAL KdGrSi=0.0; * 地下水 (Si) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)
*
( N1 )
VECTOR KdN1[ovrebent];* N1 の分配係数 N1-ZN1 distribution coefficients (ml/g)

```

SIDE KdN1 =0.01; \* N1-ZN1の分配係数  
 INITIAL KdN1 =0.01;  
 SIDE KdRsN1 =0.01; \* リザーバー中のN1-ZN1 ( H3 report 4-106)  
 SIDE KdDzN1 =0.01; \* ゆるみ域中のN1-ZN1の分配係数  
 INITIAL KdDzN1=0.01; \* ゆるみ域 (N1) distribution coefficients (m3/g)  
 SIDE KdGrN1 =0.01; \* 地下水 (N1) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)  
 INITIAL KdGrN1=0.01; \* 地下水 (N1) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)  
 \*  
 ( N2 )  
 VECTOR KdN2[ovrebent]; \* N2 の分配係数 N2-ZN2 distribution coefficients (ml/g)  
 SIDE KdN2 =0.0001; \* N2-ZN2の分配係数  
 INITIAL KdN2 =0.0001;  
 SIDE KdRsN2 =0.0001; \* リザーバー中のN2-ZN2の分配係数  
 SIDE KdDzN2 =0.0001; \* ゆるみ域中のN2-ZN2の分配係数 #  
 INITIAL KdDzN2=0.0001; \* ゆるみ域 (N2) distribution coefficients (m3/g)  
 SIDE KdGrN2 =0.0001; \* 地下水 (N2) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)  
 INITIAL KdGrN2=0.0001; \* 地下水 (N2) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)  
 \*  
 ( U )  
 VECTOR KdN3[ovrebent]; \* N3 の分配係数 N3-ZN1 distribution coefficients (ml/g)  
 SIDE KdN3 =0.0001; \* N3ZN3の分配係数  
 INITIAL KdN3 =0.0001;  
 SIDE KdRsN3 =0.0001; \* リザーバー中の N3ZN3の分配係数  
 SIDE KdDzN3 =0.0001; \* ゆるみ域中の N3ZN3の分配係数  
 INITIAL KdDzN3=0.0001; \* ゆるみ域 (U) distribution coefficients (m3/g)  
 SIDE KdGrN3 =0.0001; \* 地下水 (U) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)  
 INITIAL KdGrN3=0.0001; \* 地下水 (U) の分配係数 distribution coefficients (m3/g)  
 \*  
 \* 1.4.3 沈殿物の溶解限度 solubility of solid  
 \*  
 \* definition of perturbation patterns  
 \*  
 CONSTANT T=2.0e7; \* period of perturbation  
 CONSTANT win=1e6; \* width of perturbation in reservoir  
 CONSTANT wout=1e6; \* width of perturbation in decomp. zone  
 CONSTANT n=0.1; \* order of interpolation function  
 \*  
 \* definition of perturbation amplitude  
 \*  
 CONSTANT XMsbases1=6.3e-5; \* base sol. of metastable N1  
 CONSTANT XStbases1=6.3e-5; \* base sol. of stable N1  
 CONSTANT XMsbases2=5.5e-6; \* base sol. of metastable N2  
 CONSTANT XStbases2=2.0e-9; \* base sol. of stable N2  
 CONSTANT XMsbases3=3.9e-2; \* base sol. of metastable N3  
 CONSTANT XStbases3=3.9e-7; \* base sol. of stable N3  
 CONSTANT XMsinN1=6.3e-5; \* peak sol. of metastable N1 in reservoir  
 CONSTANT XStinN1=6.3e-5; \* peak sol. of stable N1 in reservoir  
 CONSTANT XMoutN1=6.3e-5; \* peak sol. of metastable N1 in decomp. zone  
 CONSTANT XStoutN1=6.3e-5; \* peak sol. of stable N1 in decomp. zone  
 CONSTANT XMsinN2=4.95e-1; \* peak sol. of metastable N2 in reservoir  
 CONSTANT XStinN2=2.20e-4; \* peak sol. of stable N2 in reservoir  
 CONSTANT XMoutN2=4.95e-1; \* peak sol. of metastable N2 in decomp. zone  
 CONSTANT XStoutN2=2.20e-4; \* peak sol. of stable N2 in decomp. zone  
 CONSTANT XMsinN3=1.0; \* peak sol. of metastable N3 in reservoir  
 CONSTANT XStinN3=1.0; \* peak sol. of stable N3 in reservoir  
 CONSTANT XMoutN3=1.0; \* peak sol. of metastable N3 in decomp. zone  
 CONSTANT XStoutN3=1.0; \* peak sol. of stable N3 in decomp. zone  
 \*  
 \* definition of wave function  
 \*



```

SIDE W=(1/pi)*((pi/2)+arcsin(sin(2*pi*min(t,T)/T+pi/2))); * wave function
SIDE qin=exp(-min(25,W^2/(win/T)^2)); * perturbation in reservoir
SIDE qout=exp(-min(25,W^2/(wout/T)^2)); * perturbation in decomp. zone
*
* dummy sol. variables
*
SIDE TXMsinN1=XMsbasesN1*(1-qin)+XMsinN1*qin; * perturbation of MsN1 in reserv
SIDE TXStinN1=XStbasesN1*(1-qin)+XStinN1*qin; * perturbation of StN1 in reserv
SIDE TXMoutN1=XMsbasesN1*(1-qout)+XMoutN1*qout; * prtrb. of MsN1 in decomp.
SIDE TXStoutN1=XStbasesN1*(1-qout)+XStoutN1*qout; * prtrb. of StN1 in decomp.
SIDE TXMsinN2=XMsbasesN2*(1-qin)+XMsinN2*qin; * perturbation of MsN2 in reserv
SIDE TXStinN2=XStbasesN2*(1-qin)+XStinN2*qin; * perturbation of StN2 in reserv
SIDE TXMoutN2=XMsbasesN2*(1-qout)+XMoutN2*qout; * prtrb. of MsN2 in decomp.
SIDE TXStoutN2=XStbasesN2*(1-qout)+XStoutN2*qout; * prtrb. of StN2 in decomp.
SIDE TXMsinN3=XMsbasesN3*(1-qin)+XMsinN3*qin; * perturbation of MsN3 in reserv
SIDE TXStinN3=XStbasesN3*(1-qin)+XStinN3*qin; * perturbation of StN3 in reserv
SIDE TXMoutN3=XMsbasesN3*(1-qout)+XMoutN3*qout; * prtrb. of MsN3 in decomp.
SIDE TXStoutN3=XStbasesN3*(1-qout)+XStoutN3*qout; * prtrb. of StN3 in decomp.
*
* (Si)
*
VECTOR UamSiX[ovrebt]; * Si の溶解限度 solubility (g/m3)
SIDE UamSiX =USi0; * アモルファスシリカの溶解限度
INITIAL UamSiX =USi0; * アモルファスシリカの溶解限度
SIDE URsamSiX =USi0; * アモルファスシリカの溶解限度
SIDE UDzamSiX =UDzSi0; * アモルファスシリカの溶解限度
INITIAL UDzamSiX =UDzSi0; * アモルファスシリカの溶解限度
VECTOR UFeSiX[ovrebt]; * Fe Si の溶解限度 solubility (g/m3)
SIDE UFeSiX =i0000*ascaleg; * 珪化鉄の溶解限度
INITIAL UFeSiX =i0000*ascaleg; * 珪化鉄の溶解限度
SIDE URsFeSiX =i0000*ascaleg; * 珪化鉄の溶解限度
SIDE UDzFeSiX =i0000*ascaleg; * 珪化鉄の溶解限度
INITIAL UDzFeSiX =i0000*ascaleg; * 珪化鉄の溶解限度
*
* (N1)
VECTOR UStN1X[ovrebt]; * St N1 の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE UStN1X =(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXStinN1
+ (1-(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n))*TXStoutN1)*exp(KdN1T);
* 安定N1-ZN1の溶解限度
INITIAL UStN1X =XStbasesN1; * St N1-ZN1の溶解限度
SIDE URsStN1X =TXStinN1*exp(KdN1T); * 安定N1-ZN1の溶解限度
SIDE UDzStN1X =TXStoutN1*exp(KdN1T); * 安定N1-ZN1の溶解限度
INITIAL UDzStN1X =XStbasesN1; * の溶解限度
VECTOR UMsN1X[ovrebt]; * Ms N1 の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE UMsN1X =(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXMsinN1
+ (1-(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n))*TXMoutN1)*exp(KdN1T);
* 準安定N1-ZN1の溶解限度
INITIAL UMsN1X =XMsbasesN1; * Ms N1-ZN1の溶解限度 #
SIDE URsMsN1X =TXMsinN1*exp(KdN1T); * 準安定N1-ZN1の溶解限度
SIDE UDzMsN1X =TXMoutN1*exp(KdN1T); * 準安定N1-ZN1の溶解限度
INITIAL UDzMsN1X =XMsbasesN1; * 溶解限度
*
* (N2)
VECTOR UStN2X[ovrebt]; * St N2 の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE UStN2X =(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXStinN2
+ (1-(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n))*TXStoutN2)*exp(KdcayN2*t);
* 安定N2-ZN2の溶解限度
INITIAL UStN2X =XStbasesN2; * St N2-ZN2の溶解限度
SIDE URsStN2X =TXStinN2*exp(KdcayN2*t); * 安定N2-ZN2の溶解限度
SIDE UDzStN2X =TXStoutN2*exp(KdcayN2*t); * 安定N2-ZN2の溶解限度
INITIAL UDzStN2X =XStbasesN2; * の溶解限度

```

```

VECTOR UMsN2X[ovrebent];          * Ms N2 の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE UMsN2X      =(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXMsinN2
                  +(1-((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXMsoutN2)*exp(KdcayN2*t);
* 準安定N2-ZN2の溶解限度
INITIAL UMsN2X   =XMsbaseN2;      * Ms N2-ZN2の溶解限度 #
SIDE URsMsN2X   =TXMsinN2*exp(KdcayN2*t); * 準安定N2-ZN2の溶解限度
SIDE UDzMsN2X   =TXMsoutN2*exp(KdcayN2*t); * 準安定N2-ZN2の溶解限度
INITIAL UDzMsN2X =XMsbaseN2;      * 溶解限度
*
* ( N3 )
VECTOR UStN3X[ovrebent];          * St N3 の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE UStN3X     =(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXStinN3
                  +(1-((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXStoutN3)*exp(KdcayN2*t);
* 安定N3-ZN3の溶解限度
INITIAL UStN3X  =XStbaseN3;      * St N3-ZN3の溶解限度
SIDE URsStN3X  =TXStinN3*exp(KdcayN2*t); * 安定N3-ZN3の溶解限度
SIDE UDzStN3X  =TXStoutN3*exp(KdcayN2*t); * 安定N3-ZN3の溶解限度
INITIAL UDzStN3X =XStbaseN3;      * 溶解限度
*
* ( N3 )
VECTOR UMsN3X[ovrebent];          * Ms N3 の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE UMsN3X     =(((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXMsinN3
                  +(1-((rbent-rrr)/(rbent-rresrv))^n)*TXMsoutN3)*exp(KdcayN2*t);
* 準安定N3-ZN3の溶解限度
INITIAL UMsN3X  =XMsbaseN3;      * Ms N3-ZN3の溶解限度 #
SIDE URsMsN3X  =TXMsinN3*exp(KdcayN2*t); * 準安定N3-ZN3の溶解限度
SIDE UDzMsN3X  =TXMsoutN3*exp(KdcayN2*t); * 準安定N3-ZN3の溶解限度
INITIAL UDzMsN3X =XMsbaseN3;      * 溶解限度
*
* 1.4.4 コロイドの溶解限度 solubility of colloid
* ( Si )
VECTOR uCoSiX[ovrebent];          * Si colloid の溶解限度 solubility (g/m3)
SIDE uCoSiX     =10000; * Si (g/m3)
INITIAL uCoSiX  =10000; * Si (g/m3)
SIDE uCoRsSiX   =10000;
SIDE uCoDzSiX   =10000;
INITIAL uCoDzSiX=10000;
SIDE uCoGrSiX   =10000;
INITIAL uCoGrSiX=10000;
*
* ( N1 )
VECTOR uCoN1X[ovrebent];          * N1-ZN1 colloid の溶解限度 (mol/m3)
SIDE uCoN1X     =6.3e-5*exp(KdN1T)*1e10; * N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL uCoN1X  =UMsN1X*1e10;
SIDE uCoRsN1X   =6.3e-5*exp(KdN1T)*1e10;
SIDE uCoDzN1X   =UDzMsN1X*1e10; * N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL uCoDzN1X=UDzMsN1X*1e10;
SIDE uCoGrN1X   =10000*exp(KdN1T);
INITIAL uCoGrN1X=10000;
*
* ( N2 )
VECTOR uCoN2X[ovrebent];          * N2-ZN2 colloid (mol/m3)
SIDE uCoN2X     =5.5e-6*exp(KdcayN2*t)*1e10; * N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL uCoN2X  =UMsN2X*1e10;
SIDE uCoRsN2X   =5.5e-6*exp(KdcayN2*t)*1e10;
SIDE uCoDzN2X   =UDzMsN2X*1e10; * N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL uCoDzN2X=UDzMsN2X*1e10;
SIDE uCoGrN2X   =10000*exp(KdcayN2*t);
INITIAL uCoGrN2X=10000;
*
* ( U )
VECTOR uCoN3X[ovrebent];          * N3ZN3 colloid の溶解限度 solubility (mol/m3)
SIDE uCoN3X     =3.9e-2*exp(KdcayN2*t)*1e10; * N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL uCoN3X  =UMsN3X*1e10;

```

```

SIDE uCoRsN3X =3.9e-2*exp(KdcayN2*t)*1e10;
SIDE uCoDzN3X =UDzMsN3X*1e10; * N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL uCoDzN3X=UDzMsN3X*1e10;
SIDE uCoGrN3X =10000*exp(KdcayN2*t);
INITIAL uCoGrN3X=10000;
*
* 1.4.5 可動コロイドに対するトラップコロイドの割合
* concentration of trapped colloid to mobile colloid ratio (-)
*
* ( Si )
VECTOR TrSi[ovrebent];* Si トラップコロイドの割合 trapped colloid ratio (-)
SIDE TrRsSi =0; *
SIDE TrSi =0; *
INITIAL TrSi =0; *
SIDE TrDzSi =0; * ゆるみ域における値 (Si) in decompressed zone
INITIAL TrDzSi=0; * ゆるみ域における値 (Si) in decompressed zone
SIDE TrGrSi =0; * 地下水における値 (Si) in groundwater
INITIAL TrGrSi=0; * 地下水における値 (Si) in groundwater
*
* ( N1 )
VECTOR TrN1[ovrebent];* N1 トラップコロイドの割合 trapped colloid ratio (-)
SIDE TrRsN1 =0; *
SIDE TrN1 =0; *
INITIAL TrN1 =0; *
SIDE TrDzN1 =0; * ゆるみ域における値 (N1) in decompressed zone
INITIAL TrDzN1=0; * ゆるみ域における値 (N1) in decompressed zone
SIDE TrGrN1 =0; * 地下水における値 (N1) in groundwater
INITIAL TrGrN1=0; * 地下水における値 (N1) in groundwater
*
* ( N2 )
VECTOR TrN2[ovrebent];* N2 トラップコロイドの割合 trapped colloid ratio (-)
SIDE TrRsN2 =5.48; *
SIDE TrN2 =5.48; *
INITIAL TrN2 =5.48; *
SIDE TrDzN2 =5.48; * ゆるみ域における値 (N2) in decompressed zone
INITIAL TrDzN2=5.48; * ゆるみ域における値 (N2) in decompressed zone
SIDE TrGrN2 =5.48; * 地下水における値 (N2) in groundwater
INITIAL TrGrN2=5.48; * 地下水における値 (N2) in groundwater
*
* ( U )
VECTOR TrN3[ovrebent];* N3 トラップコロイドの割合 trapped colloid ratio (-)
SIDE TrRsN3 =0; *
SIDE TrN3 =0; *
INITIAL TrN3 =0; *
SIDE TrDzN3 =0; * ゆるみ域における値 (U) in decompressed zone
INITIAL TrDzN3=0; * ゆるみ域における値 (U) in decompressed zone
SIDE TrGrN3 =0; * 地下水における値 (U) in groundwater
INITIAL TrGrN3=0; * 地下水における値 (U) in groundwater
*
* 1.4.6 地下水流量 ground water flow rate through decompressed zone (m3/y)
*
SIDE Q=1.0; *
*
*
*****
* Part 2 リザーバー reservoir *
*****
*
*-----
* (Block 2.1) 基本定数 Fundamental constants
*-----

```

```

*
*
*-----
* (Block 2.2) 計算用サイド変数 Side Variables for Calculation
*-----
*
SIDE PoroRs = 0.33 ; * リザーバーの空隙率 porosity of reservoir (-)
SIDE DensRs = 2.7e6; * リザーバーの密度 ρ density of reservoir (g/m3)
* Kd Si distribution coefficients in reservoir (m3/g)
*
*-----
* 遅延係数 retardation factor (-)
SIDE RfRsSi = 1+(1-PoroRs)/PoroRs*DensRs*KdRsSi; * ガラス Si
SIDE RfRsN1 = 1+(1-PoroRs)/PoroRs*DensRs*KdRsN1; * N1-ZN1
SIDE RfRsN2 = 1+(1-PoroRs)/PoroRs*DensRs*KdRsN2; * N2-ZN2
SIDE RfRsN3 = 1+(1-PoroRs)/PoroRs*DensRs*KdRsN3; * N3ZN3
*
*-----
* ガラス固化体の反応率 glass reaction rate (see pnc 92-081 H3 report 4-98)
SIDE kf=0.0234; * 初期溶解速度 forward reaction rate (m/y)
SIDE kr=0.005*365*ascalg; * 残存溶解速度 residual reaction rate (g/m2/y)
*
*-----
* (Block 2.3) ダミー変数 (α, β, δ) Dummy Variables
*-----
*
* α (広義拡散係数) average iffusivity ブロック3.7の内側境界条件で用いる
*
* α (シリカの広義拡散係数) average iffusivity of Si in reservoir (m2/y)
SIDE AlphRsSi=switch(RfRsSi*uCoRsSiX-URsSi,
  (Ddissolv*uCoRsSiX+Dcolloid*(URsSi-RfRsSi*uCoRsSiX)/(1+TrRsSi))/URsSi,
  Ddissolv/RfRsSi);
*
* α (N1-ZN1の広義拡散係数) average iffusivity of N1 in reservoir (m2/y)
SIDE AlphRsN1=switch(RfRsN1*uCoRsN1X-URsN1,
  (Ddissolv*uCoRsN1X+Dcolloid*(URsN1-RfRsN1*uCoRsN1X)/(1+TrRsN1))/URsN1,
  Ddissolv/RfRsN1);
*
* α (N2-ZN2の広義拡散係数) average iffusivity of N2 in reservoir (m2/y)
SIDE AlphRsN2=switch(RfRsN2*uCoRsN2X-URsN2,
  (Ddissolv*uCoRsN2X+Dcolloid*(URsN2-RfRsN2*uCoRsN2X)/(1+TrRsN2))/URsN2,
  Ddissolv/RfRsN2);
*
* α (N3ZN3の広義拡散係数) average iffusivity of U in reservoir (m2/y)
SIDE AlphRsN3=switch(RfRsN3*uCoRsN3X-URsN3,
  (Ddissolv*uCoRsN3X+Dcolloid*(URsN3-RfRsN3*uCoRsN3X)/(1+TrRsN3))/URsN3,
  Ddissolv/RfRsN3);
*
* β (シリカ全濃度のうち溶解する割合) dissolved Si to total concent ratio
SIDE BeRsSi=switch(RfRsSi*uCoRsSiX-URsSi, uCoRsSiX/URsSi, 1/RfRsSi);
*
* β (N1-ZN1全濃度のうち溶解する割合) dissolved N1 to total concent ratio
SIDE BeRsN1=switch(RfRsN1*uCoRsN1X-URsN1, uCoRsN1X/URsN1, 1/RfRsN1);
*
* β (N2-ZN2全濃度のうち溶解する割合) dissolved N2 to total concent ratio
SIDE BeRsN2=switch(RfRsN2*uCoRsN2X-URsN2, uCoRsN2X/URsN2, 1/RfRsN2);
*
* β (N3ZN3全濃度のうち溶解する割合) dissolved U to total concent ratio

```

```

SIDE BeRsN3=switch(RfRsN3*uCoRsN3X-URsN3, uCoRsN3X/URsN3, 1/RfRsN3);
*
*-----
* (Block 2.4) ガラスの溶解速度および固相の溶解・沈澱速度
*           glass dissolution rate and precipitation rate of solid
*-----
*
* ガラスの溶解速度  glass dissolution rate (g/y)
SIDE Rglass=SAglass*(kf*(URsamSiX-BeRsSi*URsSi)
                *hsmooth(URsamSiX-BeRsSi*URsSi, EPS)+kr)
                *switch(Glass, 0, 1);
*
* 固相の溶解・沈澱速度  precipitation rate of solid
*                               * アモルファスシリカ amSi (g/m3/y)
SIDE RRsamSi=MyuRsamSi*(BeRsSi*URsSi-URsamSiX)
                *(min(1, switch(URsamSiX-BeRsSi*URsSi, 1, 0)+hsmooth(vRsamSi, EPS)));
*
*                               * 珪化鉄 feSi (g/m3/y)
SIDE RRFeSi=MyuRsFeSi*(BeRsSi*URsSi-URsFeSiX)
                *(min(1, switch(URsFeSiX-BeRsSi*URsSi, 1, 0)+hsmooth(vRsFeSi, EPS)));
*
*                               * 安定N1-ZN1 St-N1-ZN1 (mol/m3/y)
SIDE RRStN1=MyuRsStN1*(BeRsN1*URsN1-URsStN1X)
                *(min(1, switch(URsStN1X-BeRsN1*URsN1, 1, 0)+hsmooth(vRsStN1-1e-5, EPS)));
*
*                               * 準安定N1-ZN1 Ms-N1-ZN1 (mol/m3/y)
SIDE RRMsN1=MyuRsMsN1*(BeRsN1*URsN1-URsMsN1X)
                *(min(1, switch(URsMsN1X-BeRsN1*URsN1, 1, 0)+hsmooth(vRsMsN1-1e-5, EPS)));
*
*                               * 安定N2-ZN2 St-N2-ZN2 (mol/m3/y)
SIDE RRStN2=MyuRsStN2*(BeRsN2*URsN2-URsStN2X)
                *(min(1, switch(URsStN2X-BeRsN2*URsN2, 1, 0)+hsmooth(vRsStN2-1e-5, EPS)));
*
*                               * 準安定N2-ZN2 Ms-N2-ZN2 (mol/m3/y)
SIDE RRMsN2=MyuRsMsN2*(BeRsN2*URsN2-URsMsN2X)
                *(min(1, switch(URsMsN2X-BeRsN2*URsN2, 1, 0)+hsmooth(vRsMsN2-1e-5, EPS)));
*
*                               * 安定 N3ZN3 St- N3ZN3 (mol/m3/y)
SIDE RRStN3=MyuRsStN3*(BeRsN3*URsN3-URsStN3X)
                *(min(1, switch(URsStN3X-BeRsN3*URsN3, 1, 0)+hsmooth(vRsStN3-1e-5, EPS)));
*
*                               * 準安定 N3ZN3 Ms- N3ZN3 (mol/m3/y)
SIDE RRMsN3=MyuRsMsN3*(BeRsN3*URsN3-URsMsN3X)
                *(min(1, switch(URsMsN3X-BeRsN3*URsN3, 1, 0)+hsmooth(vRsMsN3-1e-5, EPS)));
*
*-----
* (Block 2.5) 出力用サイド変数 Side Variables for Output
*-----
*
*           溶解シリカ濃度 dissolved silica (g/m3)
SIDE UdsRsSi=switch(RfRsSi*uCoRsSiX-URsSi, uCoRsSiX, URsSi/RfRsSi);
*
*           吸着シリカ濃度 sorbed silica (g/m3)
SIDE UsbRsSi=switch(RfRsSi*uCoRsSiX-URsSi, RfRsSi*uCoRsSiX,
                    (RfRsSi-1)*URsSi/RfRsSi);
*
*           コロイドシリカ濃度 colloid silica (g/m3)
SIDE UcoRsSi=switch(RfRsSi*uCoRsSiX-URsSi,
                    (URsSi-RfRsSi*uCoRsSiX)/(1+TrRsSi), 0);
*
*           トラップドコロイドシリカ濃度 trapped colloid silica (g/m3)

```

```

SIDE UtrRsSi=switch(RfRsSi*uCoRsSiX-URsSi,
                    TrRsSi*(URsSi-RfRsSi*uCoRsSiX)/(1+TrRsSi), 0);
*
*      溶解 N1-ZN1 濃度 dissolved N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UdsRsN1=switch(RfRsN1*uCoRsN1X-URsN1, uCoRsN1X, URsN1/RfRsN1)
                    *exp(-KdN1T);
*      吸着 N1-ZN1 濃度 sorbed N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UsbRsN1=switch(RfRsN1*uCoRsN1X-URsN1, RfRsN1*uCoRsN1X,
                    (RfRsN1-1)*URsN1/RfRsN1)*exp(-KdN1T);
*      コロイド N1-ZN1 濃度 colloid N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UcoRsN1=switch(RfRsN1*uCoRsN1X-URsN1,
                    (URsN1-RfRsN1*uCoRsN1X)/(1+TrRsN1), 0)*exp(-KdN1T);
*      トラップドコロイド N1-ZN1 濃度 trapped colloid N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UtrRsN1=switch(RfRsN1*uCoRsN1X-URsN1,
                    TrRsN1*(URsN1-RfRsN1*uCoRsN1X)/(1+TrRsN1), 0)*exp(-KdN1T);
*
*      溶解 N2-ZN2 濃度 dissolved N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UdsRsN2=switch(RfRsN2*uCoRsN2X-URsN2, uCoRsN2X, URsN2/RfRsN2)
                    *exp(-KdcayN2*t);
*      吸着 N2-ZN2 濃度 sorbed N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UsbRsN2=switch(RfRsN2*uCoRsN2X-URsN2, RfRsN2*uCoRsN2X,
                    (RfRsN2-1)*URsN2/RfRsN2)*exp(-KdcayN2*t);
*      コロイド N2-ZN2 濃度 colloid N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UcoRsN2=switch(RfRsN2*uCoRsN2X-URsN2,
                    (URsN2-RfRsN2*uCoRsN2X)/(1+TrRsN2), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*      トラップドコロイド N2-ZN2 濃度 trapped colloid N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UtrRsN2=switch(RfRsN2*uCoRsN2X-URsN2,
                    TrRsN2*(URsN2-RfRsN2*uCoRsN2X)/(1+TrRsN2), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
*      溶解 N3ZN3 濃度 dissolved N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UdsRsN3=switch(RfRsN3*uCoRsN3X-URsN3, uCoRsN3X, URsN3/RfRsN3)
                    *exp(-KdcayN2*t);
*      吸着 N3ZN3 濃度 sorbed N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UsbRsN3=switch(RfRsN3*uCoRsN3X-URsN3, RfRsN3*uCoRsN3X,
                    (RfRsN3-1)*URsN3/RfRsN3)*exp(-KdcayN2*t);
*      コロイド N3ZN3 濃度 colloid N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UcoRsN3=switch(RfRsN3*uCoRsN3X-URsN3,
                    (URsN3-RfRsN3*uCoRsN3X)/(1+TrRsN3), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*      トラップドコロイド N3ZN3 濃度 trapped colloid N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UtrRsN3=switch(RfRsN3*uCoRsN3X-URsN3,
                    TrRsN3*(URsN3-RfRsN3*uCoRsN3X)/(1+TrRsN3), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
SIDE vOutRsStN1=vRsStN1*exp(-KdN1T); * 固相濃度出力 StN1
SIDE vOutRsMsN1=vRsMsN1*exp(-KdN1T); * 固相濃度出力 MsN1
SIDE vOutRsStN2=vRsStN2*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 StN2
SIDE vOutRsMsN2=vRsMsN2*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 MsN2
SIDE vOutRsStN3=vRsStN3*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 StN3
SIDE vOutRsMsN3=vRsMsN3*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 MsN3
*
* -----
* (Block 2.6) 方程式 Evolution Equations
* -----
* define terminator
*
EQUATION terminator=max(switch(100-t, 0, 1),
                        hsmooth(max(max(URsN1, URsN2), URsN3)-1e-20, 1e-20));
INITIAL terminator=1;
*

```

\* 方程式 Evolution equation  
 \*  
 \* ガラスおよび核種のインベントリ Glass / Nuclide Inventory  
 \*  
 \* ガラスの流出 glass is transported out into overpack inner ring (2.1)  
 EQUATION  $d(\text{Glass}, t) = \text{terminator} * (-\text{Rglass})$ ;  
 \* N1-ZN1 のインベントリ Inventory of N1-ZN1 (2.2)  
 EQUATION  $d(\text{InventN1}, t) = \text{terminator} * (-\text{Rglass} * (\text{InventN1} / \text{Glass}))$ ;  
 \* N2-ZN2 のインベントリ Inventory of N2-ZN2 (2.3)  
 EQUATION  $d(\text{InventN2}, t) = \text{terminator} * ((\text{KdcayN1} * \text{InventN1} * \exp((\text{KdcayN2} - \text{KdcayN1}) * t) - \text{Rglass} * (\text{InventN2} / \text{Glass})))$ ;  
 \* N3ZN3 のインベントリ Inventory of N3ZN3 (2.4)  
 EQUATION  $d(\text{InventN3}, t) = \text{terminator} * (\text{KdcayN2} * \text{InventN2} - \text{Rglass} * (\text{InventN3} / \text{Glass}) + (\text{KdcayN2} - \text{KdcayN3}) * \text{InventN3})$ ;  
 \*  
 \* ガラスおよび核種の濃度 Glass / Nuclide concentration in reservoir  
 \*  
 \* シリカ濃度 Si concentration (g/m3) (2.5)  
 EQUATION  $\text{MasSi} = \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{URsSi} * \text{Si溶解重量 Si mass (g)}$   
 EQUATION  $d(\text{MasSi}, t) = \text{terminator} * (\text{Rglass} + \text{SAresrv} * \text{Poror}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * (\text{AlphSi}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] * \text{USi}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] - \text{AlphSi}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * \text{USi}[\text{rrr} = \text{rresrv}]) / \text{dr} - \text{Porors} * \text{VolRs} * (\text{RRsamSi} + \text{RRsFeSi}))$ ;  
 \*  
 \* N1-ZN1 濃度 N1-ZN1 concentration (mol/m3) (2.6)  
 EQUATION  $\text{MolRsN1} = \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{URsN1} * \text{N1-ZN1 溶解モル数 N1-ZN1 (mol)}$   
 EQUATION  $d(\text{MolRsN1}, t) = \text{terminator} * (\text{Rglass} * \text{InventN1} / \text{Glass} / \text{ascalen} + \text{SAresrv} * \text{Poror}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * (\text{AlphN1}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] * \text{UN1}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] - \text{AlphN1}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * \text{UN1}[\text{rrr} = \text{rresrv}]) / \text{dr} - \text{Porors} * \text{VolRs} * (\text{RRsMsN1} + \text{RRsStN1}))$ ;  
 \*  
 \* N2-ZN2 濃度 N2-ZN2 concentration (mol/m3) (2.7)  
 EQUATION  $\text{MolRsN2} = \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{URsN2} * \text{N2-ZN2 溶解モル数 N2-ZN2 (mol)}$   
 EQUATION  $d(\text{MolRsN2}, t) = \text{terminator} * (\text{Rglass} * \text{InventN2} / \text{Glass} / \text{ascalen} + \text{SAresrv} * \text{Poror}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * (\text{AlphN2}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] * \text{UN2}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] - \text{AlphN2}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * \text{UN2}[\text{rrr} = \text{rresrv}]) / \text{dr} - \text{Porors} * \text{VolRs} * (\text{RRsMsN2} + \text{RRsStN2}) + \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{KdcayN1} * (\text{URsN1} + \text{vRsStN1} + \text{vRsMsN1}) * \exp((\text{KdcayN2} - \text{KdcayN1}) * t))$ ;  
 \*  
 \* N3ZN3 濃度 N3ZN3 concentration (mol/m3) (2.8)  
 EQUATION  $\text{MolRsN3} = \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{URsN3} * \text{N3ZN3 溶解モル数 N3ZN3 (mol)}$   
 EQUATION  $d(\text{MolRsN3}, t) = \text{terminator} * (\text{Rglass} * \text{InventN3} / \text{Glass} / \text{ascalen} + \text{SAresrv} * \text{Poror}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * (\text{AlphN3}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] * \text{UN3}[\text{rrr} = \text{rresrv} + \text{dr}] - \text{AlphN3}[\text{rrr} = \text{rresrv}] * \text{UN3}[\text{rrr} = \text{rresrv}]) / \text{dr} - \text{Porors} * \text{VolRs} * (\text{RRsMsN3} + \text{RRsStN3}) + \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{KdcayN2} * (\text{URsN2} + \text{vRsMsN2} + \text{vRsStN2}) + (\text{KdcayN2} - \text{KdcayN3}) * \text{MolRsN3})$ ;  
 \*  
 \* アモルファスシリカ濃度 amorphous silica concentration (g/m3) (2.9)  
 EQUATION  $\text{MasRsamSi} = \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{vRsamSi} * \text{amSi 沈澱重量 mass (g)}$   
 EQUATION  $d(\text{MasRsamSi}, t) = \text{terminator} * (\text{Porors} * \text{VolRs} * \text{RRsamSi})$ ;  
 \*  
 \* 珪化鉄濃度 Fe silica concentration (g/m3) (2.10)  
 EQUATION  $\text{MasRsFeSi} = \text{Porors} * \text{VolRs} * \text{vRsFeSi} * \text{FeSi 沈澱重量 mass (g)}$

```

EQUATION d(MasRsFeSi, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsFeSi);
*
* 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 concentration (mol/m3) (2.11)
EQUATION MolRsStN1=Porors*VolRs*vRsStN1;* StN1-ZN1 沈殿モル数 (mol)
EQUATION d(MolRsStN1, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsStN1);
*
* 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 concentration (mol/m3) (2.12)
EQUATION MolRsMsN1=Porors*VolRs*vRsMsN1;* MsN1-ZN1 沈殿モル数 (mol)
EQUATION d(MolRsMsN1, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsMsN1);
*
* 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 concentration (mol/m3) (2.13)
EQUATION MolRsStN2=Porors*VolRs*vRsStN2;* StN2-ZN2 沈殿モル数 (mol)
EQUATION d(MolRsStN2, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsStN2);
*
* 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 concentration (mol/m3) (2.14)
EQUATION MolRsMsN2=Porors*VolRs*vRsMsN2;* MsN2-ZN2 沈殿モル数 (mol)
EQUATION d(MolRsMsN2, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsMsN2);
*
* 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 concentration (mol/m3) (2.15)
EQUATION MolRsStN3=Porors*VolRs*vRsStN3;* StN3ZN3 沈殿モル数 (mol)
EQUATION d(MolRsStN3, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsStN3
+(KdcayN2-KdcayN3)*MolRsStN3);
*
* 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 concentration (mol/m3) (2.16)
EQUATION MolRsMsN3=Porors*VolRs*vRsMsN3;* MsN3ZN3 沈殿モル数 (mol)
EQUATION d(MolRsMsN3, t)=terminator*(Porors*VolRs*RRsMsN3+
(KdcayN2-KdcayN3)*MolRsMsN3);
*
* -----
* (Block 2.7) 初期条件及び制約条件 Initial Conditions & Constraints
* -----
*
* インベントリ初期値 inventory initial value
INITIAL Glass=Gmass; *ガラス固化体重量初期値 initialize mass of glass(g)
INITIAL InventN1=InvmolN1; * N1-ZN1 モル数初期値 initialize mol of N1 (mol)
INITIAL InventN2=InvmolN2; * N2-ZN2 モル数初期値 initialize mol of N2 (mol)
INITIAL InventN3=InvmolN3; * N3ZN3 モル数初期値 initialize mol of U (mol)
*
* 濃度初期値 concentration initial value
INITIAL URsSi=URsSi0; * シリカ silica (g/m3)
INITIAL URsN1=0; * N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL URsN2=0; * N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL URsN3=0; * N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL vRsamSi=0; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
INITIAL vRsFeSi=0; * 珪化鉄濃度 Fe silica (g/m3)
INITIAL vRsStN1=0; * 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL vRsMsN1=0; * 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL vRsStN2=0; * 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL vRsMsN2=0; * 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL vRsStN3=0; * 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL vRsMsN3=0; * 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 (mol/m3)
*
INITIAL Porors =0.33; **VolRs*URsSi0; Si mass (g)
INITIAL MasSi =Porors*VolRs*URsSi0; *Si mass (g)
INITIAL MolRsN1 =Porors*VolRs*URsN1; *N1 mol (mol)
INITIAL MolRsN2 =Porors*VolRs*URsN2; *N2 mol (mol)
INITIAL MolRsN3 =Porors*VolRs*URsN3; *N3 mol (mol)
INITIAL MasRsamSi=Porors*VolRs*vRsamSi; *amSi mass (g)

```



```

INITIAL MasRsFeSi=Porors*VolRs*vRsFeSi; *FeSi mass (g)
INITIAL MolRsStN1=Porors*VolRs*vRsStN1; *StN1 mol (mol)
INITIAL MolRsMsN1=Porors*VolRs*vRsMsN1; *MsN1 mol (mol)
INITIAL MolRsStN2=Porors*VolRs*vRsStN2; *StN2 mol (mol)
INITIAL MolRsMsN2=Porors*VolRs*vRsMsN2; *MsN2 mol (mol)
INITIAL MolRsStN3=Porors*VolRs*vRsStN3; *StN3 mol (mol)
INITIAL MolRsMsN3=Porors*VolRs*vRsMsN3; *MsN3 mol (mol)
*
* 濃度制限値 concentration constraint value
CONSTRAINT URsSi>=0; * シリカ silica (g/m3)
CONSTRAINT URsN1>=0; * N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT URsN2>=0; * N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT URsN3>=0; * N3ZN3 (mol/m3)
CONSTRAINT vRsamSi>=0; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
CONSTRAINT vRsFeSi>=0; * 珪化鉄濃度 Fe silica (g/m3)
CONSTRAINT vRsStN1>=0; * 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT vRsMsN1>=0; * 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT vRsStN2>=0; * 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT vRsMsN2>=0; * 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT vRsStN3>=0; * 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 (mol/m3)
CONSTRAINT vRsMsN3>=0; * 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 (mol/m3)
*****
*
*
*****
* Part 3 オーバーパック及びベントナイト Overpack & Bentonite *
*****
*
*-----*
* (Block 3.1) ベクトル変数の宣言 Definition of Vector Variables
*-----*
*
VECTOR Poro[ovrebeht]; * ovrepack & bentnite の空隙率 porosity (-)
VECTOR Dens[ovrebeht]; * overpack & bentonite の密度 density (-)
*
VECTOR USi[ovrebeht]; * シリカ濃度 concentration of silica (g/m3)
VECTOR UN1[ovrebeht];* N1ZN1 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR UN2[ovrebeht];* N2ZN2 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR UN3[ovrebeht];* UZN3 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR AlphSi[ovrebeht]; * シリカの広義拡散関数 average diffusivity of Si (m2/y)
VECTOR AlphN1[ovrebeht]; * N1ZN1 の広義拡散関数 average diffusivity of N1 (m2/y)
VECTOR AlphN2[ovrebeht]; * N2ZN2 の広義拡散関数 average diffusivity of N2 (m2/y)
VECTOR AlphN3[ovrebeht]; * UZN3 の広義拡散関数 average diffusivity of N3 (m2/y)
VECTOR RfSi[ovrebeht];* Si の遅延係数 Rf Si retardation factor (-)
VECTOR RfN1[ovrebeht];* N1 の遅延係数 Rf N1-ZN1 retardation factor (-)
VECTOR RfN2[ovrebeht];* N2 の遅延係数 Rf N2-ZN2 retardation factor (-)
VECTOR RfN3[ovrebeht];* N3 の遅延係数 Rf N3ZN3 retardation factor (-)
VECTOR vamSi[ovrebeht];* amorphous silica の濃度 concentration (g/m3)
VECTOR vFeSi[ovrebeht];* FeSi の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR vMsN1[ovrebeht];* MsN1ZN1 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR vStN1[ovrebeht];* StN1ZN1 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR vMsN2[ovrebeht];* MsN2ZN2 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR vStN2[ovrebeht];* StN2ZN2 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR vMsN3[ovrebeht];* MsN3ZN3 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR vStN3[ovrebeht];* StN3ZN3 の濃度 concentration (mol/m3)
VECTOR PoroUSi[ovrebeht];* 空隙率×シリカ濃度 porosity×Si concentration (g/m3)
VECTOR PoroUN1[ovrebeht];* 空隙率×N1濃度 porosity×N1 concentration (mol/m3)
VECTOR PoroUN2[ovrebeht];* 空隙率×N2濃度 porosity×N2 concentration (mol/m3)

```

```

VECTOR PoroUN3[ovrebent];* 間隙率×N3濃度 porosity×N3 concentration (mol/m3)
VECTOR PorovamSi[ovrebent];* 間隙率×アモルファスシリカ濃度 porosity×amSi concent (g/m3)
VECTOR PorovFeSi[ovrebent];* 間隙率×珪化鉄濃度 porosity×FeSi concent (g/m3)
VECTOR PorovStN1[ovrebent];* 間隙率×安定N1濃度 porosity×StN1 conc (mol/m3)
VECTOR PorovMsN1[ovrebent];* 間隙率×準安定N1濃度 porosity×MsN1 conc (mol/m3)
VECTOR PorovStN2[ovrebent];* 間隙率×安定N2濃度 porosity×StN2 conc (mol/m3)
VECTOR PorovMsN2[ovrebent];* 間隙率×準安定N2濃度 porosity×MsN2 conc (mol/m3)
VECTOR PorovStN3[ovrebent];* 間隙率×安定N3濃度 porosity×StN3 conc (mol/m3)
VECTOR PorovMsN3[ovrebent];* 間隙率×準安定N3濃度 porosity×MsN3 conc (mol/m3)
VECTOR RamSi[ovrebent];* N1 Si の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RFeSi[ovrebent];* Fe Si の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RStN1[ovrebent];* St N1 の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RMsN1[ovrebent];* Ms N1 の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RStN2[ovrebent];* St N2 の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RMsN2[ovrebent];* Ms N2 の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RStN3[ovrebent];* St N3 の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR RMsN3[ovrebent];* Ms N3 の沈殿速度 precipitation rate (g/m3/y)
VECTOR BeSi[ovrebent];* Si の溶解割合 dissolved tate (-)
VECTOR BeN1[ovrebent];* N1 の溶解割合 dissolved tate (-)
VECTOR BeN2[ovrebent];* N2 の溶解割合 dissolved tate (-)
VECTOR BeN3[ovrebent];* N3 の溶解割合 dissolved tate (-)
*
**** 出力用変数 ***
VECTOR UdsSi[ovrebent];* 溶解シリカ濃度 dissolved silica (g/m3)
VECTOR UsbSi[ovrebent];* 吸着シリカ濃度 sorbed silica (g/m3)
VECTOR UcoSi[ovrebent];* コロイドシリカ濃度 colloid silica (g/m3)
VECTOR UtrSi[ovrebent];* トラップドコロイドシリカ濃度 trapped colloid si (g/m3)
VECTOR UdsN1[ovrebent];* 溶解 N1-ZN1 濃度 dissolved N1-ZN1 (mol/m3)
VECTOR UsbN1[ovrebent];* 吸着 N1-ZN1 濃度 sorbed N1-ZN1 (mol/m3)
VECTOR UcoN1[ovrebent];* コロイド N1-ZN1 濃度 colloid N1-ZN1 (mol/m3)
VECTOR UtrN1[ovrebent];* トラップドコロイド N1-ZN1 濃度 trapped colloid N1-ZN1(mol/m3)
VECTOR UdsN2[ovrebent];* 溶解 N2-ZN2 濃度 dissolved N2-ZN2 (mol/m3)
VECTOR UsbN2[ovrebent];* 吸着 N2-ZN2 濃度 sorbed N2-ZN2 (mol/m3)
VECTOR UcoN2[ovrebent];* コロイド N2-ZN2 濃度 colloid N2-ZN2 (mol/m3)
VECTOR UtrN2[ovrebent];* トラップドコロイド N2-ZN2 濃度 trapped colloid N2-ZN2(mol/m3)
VECTOR UdsN3[ovrebent];* 溶解 N3ZN3 濃度 dissolved N3ZN3 (mol/m3)
VECTOR UsbN3[ovrebent];* 吸着 N3ZN3 濃度 sorbed N3ZN3 (mol/m3)
VECTOR UcoN3[ovrebent];* コロイド N3ZN3 濃度 colloid N3ZN3 (mol/m3)
VECTOR UtrN3[ovrebent];* トラップドコロイド N3ZN3 濃度 trapped colloid N3ZN3(mol/m3)
VECTOR vOutStN1[ovrebent];* 固相濃度出力 StN1
VECTOR vOutMsN1[ovrebent];* 固相濃度出力 MsN1
VECTOR vOutStN2[ovrebent];* 固相濃度出力 StN2
VECTOR vOutMsN2[ovrebent];* 固相濃度出力 MsN2
VECTOR vOutStN3[ovrebent];* 固相濃度出力 StN3
VECTOR vOutMsN3[ovrebent];* 固相濃度出力 MsN3
*
*
* (Block 3.2) 計算用サイド変数 Side Variables for Calculation
*
*
* 遅延係数 retardation factor (-)
SIDE RfSi = 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdSi; * ガラス Si
SIDE RfN1 = 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdN1; * N1-ZN1
SIDE RfN2 = 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdN2; * N2-ZN2
SIDE RfN3 = 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdN3; * N3ZN3
*
*

```

```

*-----
* (Block 3.3) ダミー変数 ( $\alpha, \beta, \delta$ ) Dummy Variables
*-----
*
*  $\alpha$  (シリカの広義拡散係数) average iffusivity of Si (m2/y)
EQUATION AlphSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi,
      (Ddissolv*uCoSiX+Dcolloid*(USi-RfSi*uCoSiX)/(1+TrSi))/USi,
      Ddissolv/RfSi);
*
*  $\alpha$  (N1-ZN1の広義拡散係数) average iffusivity of N1 (m2/y)
EQUATION AlphN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1,
      (Ddissolv*uCoN1X+Dcolloid*(UN1-RfN1*uCoN1X)/(1+TrN1))/UN1,
      Ddissolv/RfN1);
*
*  $\alpha$  (N2-ZN2の広義拡散係数) average iffusivity of N2 (m2/y)
EQUATION AlphN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2,
      (Ddissolv*uCoN2X+Dcolloid*(UN2-RfN2*uCoN2X)/(1+TrN2))/UN2,
      Ddissolv/RfN2);
*
*  $\alpha$  (N3ZN3の広義拡散係数) average iffusivity of U (m2/y)
EQUATION AlphN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3,
      (Ddissolv*uCoN3X+Dcolloid*(UN3-RfN3*uCoN3X)/(1+TrN3))/UN3,
      Ddissolv/RfN3);
*
*  $\beta$  (シリカ全濃度のうち溶解する割合) dissolved N1 to total concent ratio
SIDE BeSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi, uCoSiX/USi, 1/RfSi);
*
*  $\beta$  (N1-ZN1全濃度のうち溶解する割合) dissolved N1 to total concent ratio
SIDE BeN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1, uCoN1X/UN1, 1/RfN1);
*
*  $\beta$  (N2-ZN2全濃度のうち溶解する割合) dissolved N2 to total concent ratio
SIDE BeN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2, uCoN2X/UN2, 1/RfN2);
*
*  $\beta$  (N3ZN3全濃度のうち溶解する割合) dissolved U to total concent ratio
SIDE BeN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3, uCoN3X/UN3, 1/RfN3);
*
*-----
* (Block 3.4) 出力用サイド変数 Side Variables for Output
*-----
*
* 溶解シリカ濃度 dissolved silica (g/m3)
SIDE UdsSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi, uCoSiX, USi/RfSi);
*
* 吸着シリカ濃度 sorbed silica (g/m3)
SIDE UbsSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi, RfSi*uCoSiX,
      (RfSi-1)*USi/RfSi);
*
* コロイドシリカ濃度 colloid silica (g/m3)
SIDE UcoSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi,
      (USi-RfSi*uCoSiX)/(1+TrSi), 0);
*
* トラップドコロイドシリカ濃度 trapped colloid silica (g/m3)
SIDE UtrSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi,
      TrSi*(USi-RfSi*uCoSiX)/(1+TrSi), 0);
*
* 溶解 N1-ZN1 濃度 dissolved N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UdsN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1, uCoN1X, UN1/RfN1)*exp(-KdN1T);
*
* 吸着 N1-ZN1 濃度 sorbed N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UbsN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1, RfN1*uCoN1X,
      (RfN1-1)*UN1/RfN1)*exp(-KdN1T);
*
* コロイド N1-ZN1 濃度 colloid N1-ZN1 (mol/m3)

```

```

SIDE UcoN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1,
                  (UN1-RfN1*uCoN1X)/(1+TrN1), 0)*exp(-KdN1T);
*
      トラップドコロイド N1-ZN1 濃度 trapped colloid N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UtrN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1,
                  TrN1*(UN1-RfN1*uCoN1X)/(1+TrN1), 0)*exp(-KdN1T);
*
*
      溶解 N2-ZN2 濃度 dissolved N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UdsN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2, uCoN2X, UN2/RfN2)*exp(-KdcayN2*t);
*
      吸着 N2-ZN2 濃度 sorbed N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UsbN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2, RfN2*uCoN2X,
                  (RfN2-1)*UN2/RfN2)*exp(-KdcayN2*t);
*
      コロイド N2-ZN2 濃度 colloid N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UcoN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2,
                  (UN2-RfN2*uCoN2X)/(1+TrN2), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
      トラップドコロイド N2-ZN2 濃度 trapped colloid N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UtrN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2,
                  TrN2*(UN2-RfN2*uCoN2X)/(1+TrN2), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
*
      溶解 N3ZN3 濃度 dissolved N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UdsN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3, uCoN3X, UN3/RfN3)*exp(-KdcayN2*t);
*
      吸着 N3ZN3 濃度 sorbed N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UsbN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3, RfN3*uCoN3X,
                  (RfN3-1)*UN3/RfN3)*exp(-KdcayN2*t);
*
      コロイド N3ZN3 濃度 colloid N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UcoN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3,
                  (UN3-RfN3*uCoN3X)/(1+TrN3), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
      トラップドコロイド N3ZN3 濃度 trapped colloid N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UtrN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3,
                  TrN3*(UN3-RfN3*uCoN3X)/(1+TrN3), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
SIDE vOutStN1=vStN1*exp(-KdN1T); * 固相濃度出力 StN1
SIDE vOutMsN1=vMsN1*exp(-KdN1T); * 固相濃度出力 MsN1
SIDE vOutStN2=vStN2*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 StN2
SIDE vOutMsN2=vMsN2*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 MsN2
SIDE vOutStN3=vStN3*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 StN3
SIDE vOutMsN3=vMsN3*exp(-KdcayN2*t); * 固相濃度出力 MsN3
*
*
-----
* (Block 3.5) 方程式 Evolution Equations
*
-----
*
* 3.5.1 溶解・沈澱速度 precipitation rate of solid
*
* アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3/y)
EQUATION RamSi=MyuamSi*(BeSi*USi-UamSiX)
          *(min(1, switch(UamSiX-BeSi*USi, 1, 0)+hsmooth(vamSi, EPS)));
*
* 珪化鉄 FeSi (g/m3/y)
EQUATION RFeSi=MyuFeSi*(BeSi*USi-UFeSiX)
          *(min(1, switch(UFeSiX-BeSi*USi, 1, 0)+hsmooth(vFeSi, EPS)));
*
* 安定N1-ZN1 St-N1-ZN1 (mol/m3/y)
EQUATION RStN1=MyuStN1*(BeN1*UN1-UStN1X)
          *(min(1, switch(UStN1X-BeN1*UN1, 1, 0)+hsmooth(vStN1-1e-5, EPS)));
*
* 準安定N1-ZN1 Ms-N1-ZN1 (mol/m3/y)
EQUATION RMsN1=MyuMsN1*(BeN1*UN1-UMsN1X)
          *(min(1, switch(UMsN1X-BeN1*UN1, 1, 0)+hsmooth(vMsN1-1e-5, EPS)));

```

```

*
* 安定N2-ZN2 St-N2-ZN2 (mol/m3/y)
EQUATION RStN2=MyuStN2*(BeN2*UN2-USStN2X)
* (min(1, switch(USStN2X-BeN2*UN2, 1, 0)+hsmooth(vStN2-1e-5, EPS)));
*
* 準安定N2-ZN2 Ms-N2-ZN2 (mol/m3/y)
EQUATION RMsN2=MyuMsN2*(BeN2*UN2-UMsN2X)
* (min(1, switch(UMsN2X-BeN2*UN2, 1, 0)+hsmooth(vMsN2-1e-5, EPS)));
*
* 安定 N3ZN3 St- N3ZN3 (mol/m3/y)
EQUATION RStN3=MyuStN3*(BeN3*UN3-USStN3X)
* (min(1, switch(USStN3X-BeN3*UN3, 1, 0)+hsmooth(vStN3-1e-5, EPS)));
*
* 準安定 N3ZN3 Ms- N3ZN3 (mol/m3/y)
EQUATION RMsN3=MyuMsN3*(BeN3*UN3-UMsN3X)
* (min(1, switch(UMsN3X-BeN3*UN3, 1, 0)+hsmooth(vMsN3-1e-5, EPS)));
*
* -----
*
* 3.5.2 支配方程式 Governing equation
*
* ガラスおよび核種の濃度 Glass / Nuclide concentration
*
* シリカ濃度 Si concentration (g/m3) (3.1)
EQUATION PorouSi=Porou*USi;* Si濃度 Si concentration (g/m3)
EQUATION d(PorouSi[rresrv<rrr<rbent], t)
=terminator*(1/rrr*(Porou[rrr]*rrr*(AlphSi[rrr+dr]*USi[rrr+dr]-AlphSi[rrr]*USi[rrr])/dr
-Porou[rrr-dr]*(rrr-dr)*(AlphSi[rrr]*USi[rrr]-AlphSi[rrr-dr]*USi[rrr-dr])/dr)/dr
-Porou*RamSi -Porou*RFesi);
*
* N1-ZN1 濃度 Ni-ZN1 concentration (mol/m3) (3.2)
EQUATION PorouN1=Porou*UN1;* N1-ZN1 濃度 Ni-ZN1 concentration (mol/m3)
EQUATION d(PorouN1[rresrv<rrr<rbent], t)
=terminator*(1/rrr*(Porou[rrr]*rrr*(AlphN1[rrr+dr]*UN1[rrr+dr]-AlphN1[rrr]*UN1[rrr])/dr
-Porou[rrr-dr]*(rrr-dr)*(AlphN1[rrr]*UN1[rrr]-AlphN1[rrr-dr]*UN1[rrr-dr])/dr)/dr
-Porou*RMsn1 -Porou*RStn1);
*
* N2-ZN2 濃度 N2-ZN2 concentration (mol/m3) (3.3)
EQUATION PorouN2=Porou*UN2;* N2-ZN2 濃度 N2-ZN2 concentration (mol/m3)
EQUATION d(PorouN2[rresrv<rrr<rbent], t)
=terminator*(1/rrr*(Porou[rrr]*rrr*(AlphN2[rrr+dr]*UN2[rrr+dr]-AlphN2[rrr]*UN2[rrr])/dr
-Porou[rrr-dr]*(rrr-dr)*(AlphN2[rrr]*UN2[rrr]-AlphN2[rrr-dr]*UN2[rrr-dr])/dr)/dr
-Porou*RMsn2 -Porou*RStn2 +Porou*KdecayN1*(UN1+vStn1+vMsn1)*
exp((KdecayN2-KdecayN1)*t));
*
* N3ZN3 濃度 N3ZN3 concentration (mol/m3) (3.4)
EQUATION PorouN3=Porou*UN3;* N3ZN3 濃度 N3ZN3 concentration (mol/m3)
EQUATION d(PorouN3[rresrv<rrr<rbent], t)
=terminator*(1/rrr*(Porou[rrr]*rrr*(AlphN3[rrr+dr]*UN3[rrr+dr]-AlphN3[rrr]*UN3[rrr])/dr
-Porou[rrr-dr]*(rrr-dr)*(AlphN3[rrr]*UN3[rrr]-AlphN3[rrr-dr]*UN3[rrr-dr])/dr)/dr
-Porou*RMsn3 -Porou*RStn3 +Porou*KdecayN2*(UN2+vMsn2+vStn2)
+(KdecayN2-KdecayN3)*PorouN3);
*
* ガラスおよび核種の固相濃度 Glass / Nuclide solid concentration
*
* アモルファスシリカ濃度 amorphous silica concentration (g/m3) (3.5)
EQUATION PorovamSi=Porou*vamSi;
EQUATION d(PorovamSi, t)=terminator*(Porou*RamSi);

```

```

*
* 珪化鉄濃度 Fe silica concentration (g/m3) (3.6)
EQUATION PorovFeSi=Porov*vFeSi;
EQUATION d(PorovFeSi, t)=terminator*(Porov*RFeSi);
*
* 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 concentration (mol/m3) (3.7)
EQUATION PorovStN1=Porov*vStN1;
EQUATION d(PorovStN1, t)=terminator*(Porov*RStN1);
*
* 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 concentration (mol/m3) (3.8)
EQUATION PorovMsN1=Porov*vMsN1;
EQUATION d(PorovMsN1, t)=terminator*(Porov*RMsn1);
*
* 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 concentration (mol/m3) (3.9)
EQUATION PorovStN2=Porov*vStN2;
EQUATION d(PorovStN2, t)=terminator*(Porov*RStN2);
*
* 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 concentration (mol/m3) (3.10)
EQUATION PorovMsN2=Porov*vMsN2;
EQUATION d(PorovMsN2, t)=terminator*(Porov*RMsn2);
*
* 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 concentration (mol/m3) (3.11)
EQUATION PorovStN3=Porov*vStN3;
EQUATION d(PorovStN3, t)=terminator*(Porov*RStN3
+ (KdcayN2-KdcayN3)*PorovStN3);
*
* 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 concentration (mol/m3) (3.12)
EQUATION PorovMsN3=Porov*vMsN3;
EQUATION d(PorovMsN3, t)=terminator*(Porov*RMsn3+(KdcayN2-KdcayN3)*PorovMsN3);
*
* -----
* (Block 3.6) 初期条件及び制約条件 Initial Conditions & Constraints
* -----
*
INITIAL Porov=Porov0; * 空隙率 porosity (-)
INITIAL Dens = 2.7e6;
* 濃度初期値 concentration initial value
INITIAL USi=USi0; * シリカ silica (g/m3)
INITIAL UN1=0; * N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL UN2=0; * N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL UN3=0; * N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL vamSi=vamSi0; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
INITIAL vFeSi=0; * 珪化鉄濃度 Fe silica (g/m3)
INITIAL vStN1=0; * 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL vMsN1=0; * 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL vStN2=0; * 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL vMsN2=0; * 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL vStN3=0; * 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL vMsN3=0; * 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 (mol/m3)
*
INITIAL PorovUSi=Porov*USi0; * 実シリカ濃度 silica (g/m3)
INITIAL PorovUN1=Porov*UN1;
INITIAL PorovUN2=Porov*UN2;
INITIAL PorovUN3=Porov*UN3;
INITIAL PorovvamSi=Porov*vamSi;
INITIAL PorovFeSi=Porov*vFeSi;
INITIAL PorovStN1=Porov*vStN1;
INITIAL PorovMsN1=Porov*vMsN1;

```

```

INITIAL PorovStN2=Porov*vStN2;
INITIAL PorovMsN2=Porov*vMsN2;
INITIAL PorovStN3=Porov*vStN3;
INITIAL PorovMsN3=Porov*vMsN3;
*
INITIAL RfSi= 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdSi; *
INITIAL RfN1= 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdN1;*N1   の遅延係数
INITIAL RfN2= 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdN2;*N2   の遅延係数
INITIAL RfN3= 1+(1-Poro)/Poro*Dens*KdN3;*N3   の遅延係数
*
INITIAL AlphSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi,
  (Ddissolv*uCoSiX+Dcolloid*(USi-RfSi*uCoSiX)/(1+TrSi))/USi,
  Ddissolv/RfSi);
INITIAL AlphN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1,
  (Ddissolv*uCoN1X+Dcolloid*(UN1-RfN1*uCoN1X)/(1+TrN1))/UN1,
  Ddissolv/RfN1);
INITIAL AlphN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2,
  (Ddissolv*uCoN2X+Dcolloid*(UN2-RfN2*uCoN2X)/(1+TrN2))/UN2,
  Ddissolv/RfN2);
INITIAL AlphN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3,
  (Ddissolv*uCoN3X+Dcolloid*(UN3-RfN3*uCoN3X)/(1+TrN3))/UN3,
  Ddissolv/RfN3);
*
INITIAL BeSi=switch(RfSi*uCoSiX-USi, uCoSiX/USi, 1/RfSi);
INITIAL BeN1=switch(RfN1*uCoN1X-UN1, uCoN1X/UN1, 1/RfN1);
INITIAL BeN2=switch(RfN2*uCoN2X-UN2, uCoN2X/UN2, 1/RfN2);
INITIAL BeN3=switch(RfN3*uCoN3X-UN3, uCoN3X/UN3, 1/RfN3);
*
INITIAL RamSi=MyuamSi*(BeSi*USi-UamSiX)
  *(min(1, switch(UamSiX-BeSi*USi, 1, 0))+hsmooth(vamSi, EPS));
INITIAL RFeSi=MyuFeSi*(BeSi*USi-UFeSiX)
  *(min(1, switch(UFeSiX-BeSi*USi, 1, 0))+hsmooth(vFeSi, EPS));
INITIAL RStN1=MyuStN1*(BeN1*UN1-UStN1X)
  *(min(1, switch(UStN1X-BeN1*UN1, 1, 0))+hsmooth(vStN1-1e-5, EPS));
INITIAL RMsN1=MyuMsN1*(BeN1*UN1-UMsN1X)
  *(min(1, switch(UMsN1X-BeN1*UN1, 1, 0))+hsmooth(vMsN1-1e-5, EPS));
INITIAL RStN2=MyuStN2*(BeN2*UN2-UStN2X)
  *(min(1, switch(UStN2X-BeN2*UN2, 1, 0))+hsmooth(vStN2-1e-5, EPS));
INITIAL RMsN2=MyuMsN2*(BeN2*UN2-UMsN2X)
  *(min(1, switch(UMsN2X-BeN2*UN2, 1, 0))+hsmooth(vMsN2-1e-5, 4.6672e-2));
INITIAL RStN3=MyuStN3*(BeN3*UN3-UStN3X)
  *(min(1, switch(UStN3X-BeN3*UN3, 1, 0))+hsmooth(vStN3-1e-5, EPS));
INITIAL RMsN3=MyuMsN3*(BeN3*UN3-UMsN3X)
  *(min(1, switch(UMsN3X-BeN3*UN3, 1, 0))+hsmooth(vMsN3-1e-5, EPS));
*
*-----
*
* 濃度制限値 concentration constraint value
CONSTRAINT USi>=0; * シリカ silica (g/m3)
CONSTRAINT vamSi>=0; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
CONSTRAINT vFeSi>=0; * 珪化鉄濃度 Fe silica (g/m3)
CONSTRAINT UN1>=0; * N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT UN2>=0; * N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT UN3>=0; * N3ZN3 (mol/m3)
CONSTRAINT vStN1>=0; * 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT vMsN1>=0; * 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT vStN2>=0; * 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT vMsN2>=0; * 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 (mol/m3)

```

```

CONSTRAINT vStN3>=0; * 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 (mol/m3)
CONSTRAINT vMsN3>=0; * 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 (mol/m3)
*
*-----
* (Block 3.7) 境界条件 boundary condition
*-----
*
* 内側境界条件 (リザーバーとオーバーバックの間) inner boundary condition
EQUATION AlphSi[rrr=rresrv]*USi[rrr=rresrv]=AlphRsSi*URsSi;
EQUATION AlphN1[rrr=rresrv]*UN1[rrr=rresrv]=AlphRsN1*URsN1;
EQUATION AlphN2[rrr=rresrv]*UN2[rrr=rresrv]=AlphRsN2*URsN2;
EQUATION AlphN3[rrr=rresrv]*UN3[rrr=rresrv]=AlphRsN3*URsN3;
*
* 外側境界条件 (ベントナイトとゆるみ域間) outer boundary condition
EQUATION AlphSi[rrr=rbent]*USi[rrr=rbent]=AlphDzSi*UDzSi;
EQUATION AlphN1[rrr=rbent]*UN1[rrr=rbent]=AlphDzN1*UDzN1;
EQUATION AlphN2[rrr=rbent]*UN2[rrr=rbent]=AlphDzN2*UDzN2;
EQUATION AlphN3[rrr=rbent]*UN3[rrr=rbent]=AlphDzN3*UDzN3;
*
*
*****
* Part 4 ゆるみ域 Decompressed zoneE *
*****
*
*-----
* (Block 4.1) 基本定数 Fundamental constants
*-----
*
CONSTANT VolDz =pi*h*(rdecmp*rdecmp-rbent*rbent); * ゆるみ域体積
* volume of decomp zone (m3)
*
*-----
* (Block 4.2) 計算用サイド変数 Side Variables for Calculation
*-----
*
SIDE PoroDz = 0.1; * ゆるみ域の空隙率 porosity of Decompressed zone (-)
SIDE DensDz = 2.7e6; * ゆるみ域の密度 ρ density of Decompressed zone (g/m3)
*
SIDE PoroGr = 0.1; * 地下水の空隙率 porosity of groundwater (-)
SIDE DensGr = 2.7e6; * 地下水の密度 ρ density of groundwater (g/m3)
*
SIDE UGrSi=UDzSi; * Si (g/m3)
SIDE UGrN1=0; * Si (g/m3)
SIDE UGrN2=0; * Si (g/m3)
SIDE UGrN3=0; * Si (g/m3)
*
* 遅延係数 retardation factor (-)
SIDE RfDzSi = 1+(1-PoroDz)/PoroDz*DensDz*KdDzSi; * ガラス Si
SIDE RfDzN1 = 1+(1-PoroDz)/PoroDz*DensDz*KdDzN1; * N1-ZN1
SIDE RfDzN2 = 1+(1-PoroDz)/PoroDz*DensDz*KdDzN2; * N2-ZN2
SIDE RfDzN3 = 1+(1-PoroDz)/PoroDz*DensDz*KdDzN3; * N3ZN3
*
* 遅延係数(地下水中) retardation factor in groundwater (-)
SIDE RfGrSi = 1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrSi; * ガラス Si
SIDE RfGrN1 = 1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrN1; * N1-ZN1
SIDE RfGrN2 = 1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrN2; * N2-ZN2
SIDE RfGrN3 = 1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrN3; * N3ZN3
*

```



```

*-----
* (Block 4.3) ダミー変数 ( $\alpha, \beta, \delta$ ) Dummy Variables
*-----
*
*  $\alpha$  (広義拡散係数) average iffusivity ブロック3.7の外側境界条件で用いる
*
*  $\alpha$  (シリカの広義拡散係数) average iffusivity of Si in decom zon (m2/y)
SIDE AlphDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi,
  (Ddissolv*uCoDzSiX+Dcolloid*(UDzSi-RfDzSi*uCoDzSiX)/(1+TrDzSi))/UDzSi,
  Ddissolv/RfDzSi);
*
*  $\alpha$  (N1-ZN1の広義拡散係数) average iffusivity of N1 in decom zon (m2/y)
SIDE AlphDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1,
  (Ddissolv*uCoDzN1X+Dcolloid*(UDzN1-RfDzN1*uCoDzN1X)/(1+TrDzN1))/UDzN1,
  Ddissolv/RfDzN1);
*
*  $\alpha$  (N2-ZN2の広義拡散係数) average iffusivity of N2 in decom zon (m2/y)
SIDE AlphDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2,
  (Ddissolv*uCoDzN2X+Dcolloid*(UDzN2-RfDzN2*uCoDzN2X)/(1+TrDzN2))/UDzN2,
  Ddissolv/RfDzN2);
*
*  $\alpha$  (N3ZN3の広義拡散係数) average iffusivity of U in decom zon (m2/y)
SIDE AlphDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3,
  (Ddissolv*uCoDzN3X+Dcolloid*(UDzN3-RfDzN3*uCoDzN3X)/(1+TrDzN3))/UDzN3,
  Ddissolv/RfDzN3);
*-----
*  $\beta$  (シリカ全濃度のうち溶解する割合) dissolved Si to total concent ratio
SIDE BeDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi, uCoDzSiX/UDzSi, 1/RfDzSi);
*  $\beta$  (N1-ZN1全濃度のうち溶解する割合) dissolved N1 to total concent ratio
SIDE BeDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1, uCoDzN1X/UDzN1, 1/RfDzN1);
*  $\beta$  (N2-ZN2全濃度のうち溶解する割合) dissolved N2 to total concent ratio
SIDE BeDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2, uCoDzN2X/UDzN2, 1/RfDzN2);
*  $\beta$  (N3ZN3全濃度のうち溶解する割合) dissolved U to total concent ratio
SIDE BeDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3, uCoDzN3X/UDzN3, 1/RfDzN3);
*-----
*
*  $\delta$  (全濃度のうち流出/流入する割合) average advective mobility (-)
*
* ゆるみ域から地下水へ流出 decompressed zone
* Si
SIDE DeDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi,
  (uCoDzSiX+(UDzSi-RfDzSi*uCoDzSiX)/(1+TrDzSi))/UDzSi, 1/RfDzSi);
* N1-ZN1
SIDE DeDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1,
  (uCoDzN1X+(UDzN1-RfDzN1*uCoDzN1X)/(1+TrDzN1))/UDzN1, 1/RfDzN1);
* N2-ZN2
SIDE DeDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2,
  (uCoDzN2X+(UDzN2-RfDzN2*uCoDzN2X)/(1+TrDzN2))/UDzN2, 1/RfDzN2);
* N3ZN3
SIDE DeDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3,
  (uCoDzN3X+(UDzN3-RfDzN3*uCoDzN3X)/(1+TrDzN3))/UDzN3, 1/RfDzN3);
*
*  $\delta$  (地下水から流入してくる割合) average advective mobility in-coming(-)
*
* 地下水からゆるみ域へ流入 in-coming groundwater
* Si
SIDE DeGrSi=switch(RfGrSi*uCoGrSiX-UGrSi,
  (uCoGrSiX+(UGrSi-RfGrSi*uCoGrSiX)/(1+TrGrSi))/UGrSi, 1/RfGrSi);

```

```

* N1-ZN1
SIDE DeGrN1=switch(RfGrN1*uCoGrN1X-UGrN1,
  (uCoGrN1X+(UGrN1-RfGrN1*uCoGrN1X)/(1+TrGrN1))/UGrN1, 1/RfGrN1);
* N2-ZN2
SIDE DeGrN2=switch(RfGrN2*uCoGrN2X-UGrN2,
  (uCoGrN2X+(UGrN2-RfGrN2*uCoGrN2X)/(1+TrGrN2))/UGrN2, 1/RfGrN2);
* N3ZN3
SIDE DeGrN3=switch(RfGrN3*uCoGrN3X-UGrN3,
  (uCoGrN3X+(UGrN3-RfGrN3*uCoGrN3X)/(1+TrGrN3))/UGrN3, 1/RfGrN3);
*
* -----
* (Block 4.4) 固相の溶解・沈澱速度 precipitation rate of solid
* -----
*
* アモルファスシリカ amSi (g/m3/y)
SIDE RDzamSi=MyuDzSi*(BeDzSi*UDzSi-UDzSiX)
  *(min(1, switch(UDzSiX-BeDzSi*UDzSi, 1, 0))+hsmooth(vDzSi, EPS));
*
* 珪化鉄 feSi (g/m3/y)
SIDE RDzFeSi=MyuDzFeSi*(BeDzSi*UDzSi-UDzFeSiX)
  *(min(1, switch(UDzFeSiX-BeDzSi*UDzSi, 1, 0))+hsmooth(vDzFeSi, EPS));
*
* 安定N1-ZN1 St-N1-ZN1 (mol/m3/y)
SIDE RDzStN1=MyuDzStN1*(BeDzN1*UDzN1-UDzStN1X)
  *(min(1, switch(UDzStN1X-BeDzN1*UDzN1, 1, 0))+hsmooth(vDzStN1-1e-5, EPS));
*
* 準安定N1-ZN1 Ms-N1-ZN1 (mol/m3/y)
SIDE RDzMsN1=MyuDzMsN1*(BeDzN1*UDzN1-UDzMsN1X)
  *(min(1, switch(UDzMsN1X-BeDzN1*UDzN1, 1, 0))+hsmooth(vDzMsN1-1e-5, EPS));
*
* 安定N2-ZN2 St-N2-ZN2 (mol/m3/y)
SIDE RDzStN2=MyuDzStN2*(BeDzN2*UDzN2-UDzStN2X)
  *(min(1, switch(UDzStN2X-BeDzN2*UDzN2, 1, 0))+hsmooth(vDzStN2-1e-5, EPS));
*
* 準安定N2-ZN2 Ms-N2-ZN2 (mol/m3/y)
SIDE RDzMsN2=MyuDzMsN2*(BeDzN2*UDzN2-UDzMsN2X)
  *(min(1, switch(UDzMsN2X-BeDzN2*UDzN2, 1, 0))+hsmooth(vDzMsN2-1e-5, EPS));
*
* 安定 N3ZN3 St- N3ZN3 (mol/m3/y)
SIDE RDzStN3=MyuDzStN3*(BeDzN3*UDzN3-UDzStN3X)
  *(min(1, switch(UDzStN3X-BeDzN3*UDzN3, 1, 0))+hsmooth(vDzStN3-1e-5, EPS));
*
* 準安定 N3ZN3 Ms- N3ZN3 (mol/m3/y)
SIDE RDzMsN3=MyuDzMsN3*(BeDzN3*UDzN3-UDzMsN3X)
  *(min(1, switch(UDzMsN3X-BeDzN3*UDzN3, 1, 0))+hsmooth(vDzMsN3-1e-5, EPS));
*
* -----
* (Block 4.5) 出力用サイド変数 Side Variables for Output
* -----
*
* 溶解シリカ濃度 dissolved silica (g/m3)
SIDE UdsDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi, uCoDzSiX, UDzSi/RfDzSi);
*
* 吸着シリカ濃度 sorbed silica (g/m3)
SIDE UsbDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi, RfDzSi*uCoDzSiX,
  (RfDzSi-1)*UDzSi/RfDzSi);
*
* コロイドシリカ濃度 colloid silica (g/m3)
SIDE UcoDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi,
  (UDzSi-RfDzSi*uCoDzSiX)/(1+TrDzSi), 0);

```

```

*          トラップドコロイドシリカ濃度 trapped colloid silica (g/m3)
SIDE UtrDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi,
                    TrDzSi*(UDzSi-RfDzSi*uCoDzSiX)/(1+TrDzSi), 0);
*
*          溶解 N1-ZN1 濃度 dissolved N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UdsDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1, uCoDzN1X, UDzN1/RfDzN1)
                    *exp(-KdN1T);
*          吸着 N1-ZN1 濃度 sorbed N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UsbDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1, RfDzN1*uCoDzN1X,
                    (RfDzN1-1)*UDzN1/RfDzN1)*exp(-KdN1T);
*          コロイド N1-ZN1 濃度 colloid N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UcoDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1,
                    (UDzN1-RfDzN1*uCoDzN1X)/(1+TrDzN1), 0)*exp(-KdN1T);
*          トラップドコロイド N1-ZN1 濃度 trapped colloid N1-ZN1 (mol/m3)
SIDE UtrDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1,
                    TrDzN1*(UDzN1-RfDzN1*uCoDzN1X)/(1+TrDzN1), 0)*exp(-KdN1T);
*
*          溶解 N2-ZN2 濃度 dissolved N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UdsDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2, uCoDzN2X, UDzN2/RfDzN2)
                    *exp(-KdcayN2*t);
*          吸着 N2-ZN2 濃度 sorbed N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UsbDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2, RfDzN2*uCoDzN2X,
                    (RfDzN2-1)*UDzN2/RfDzN2)*exp(-KdcayN2*t);
*          コロイド N2-ZN2 濃度 colloid N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UcoDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2,
                    (UDzN2-RfDzN2*uCoDzN2X)/(1+TrDzN2), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*          トラップドコロイド N2-ZN2 濃度 trapped colloid N2-ZN2 (mol/m3)
SIDE UtrDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2,
                    TrDzN2*(UDzN2-RfDzN2*uCoDzN2X)/(1+TrDzN2), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
*          溶解 N3ZN3 濃度 dissolved N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UdsDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3, uCoDzN3X, UDzN3/RfDzN3)
                    *exp(-KdcayN2*t);
*          吸着 N3ZN3 濃度 sorbed N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UsbDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3, RfDzN3*uCoDzN3X,
                    (RfDzN3-1)*UDzN3/RfDzN3)*exp(-KdcayN2*t);
*          コロイド N3ZN3 濃度 colloid N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UcoDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3,
                    (UDzN3-RfDzN3*uCoDzN3X)/(1+TrDzN3), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*          トラップドコロイド N3ZN3 濃度 trapped colloid N3ZN3 (mol/m3)
SIDE UtrDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3,
                    TrDzN3*(UDzN3-RfDzN3*uCoDzN3X)/(1+TrDzN3), 0)*exp(-KdcayN2*t);
*
* -----
* フラックス出力 flux
*
SIDE FluxSi = Q*(DeDzSi*UDzSi-DeGrSi*UGrSi); * シリカ Si (g/y)
*
SIDE FluxN1 = Q*(DeDzN1*UDzN1-DeGrN1*UGrN1)*exp(-KdN1T); * N1-ZN1 (mol/y)
*
SIDE FluxN2 = Q*(DeDzN2*UDzN2-DeGrN2*UGrN2)*exp(-KdcayN2*t); * N2-ZN2 (mol/y)
*
SIDE FluxN3 = Q*(DeDzN3*UDzN3-DeGrN3*UGrN3)*exp(-KdcayN2*t); * N3ZN3 (mol/y)
*
* -----
* (Block 4.6) 方程式 Evolution Equations
* -----
*

```

- \* ガラスおよび核種の濃度 Glass / Nuclide concentration in reservoir  
\*
- \* シリカ濃度 Si concentration (g/m3) (4.1)  
EQUATION MasDzSi=Poroz\*VolDz\*UDzSi;\* Si溶解重量 Si mass (g)  
EQUATION d(MasDzSi, t) =  
terminator\*(-SAbent\*Poroz[rrr=rbent]\*(AlphSi[rrr=rbent]\*USi[rrr=rbent]  
-AlphSi[rrr=rbent-dr]\*USi[rrr=rbent-dr])/dr  
-Poroz\*VolDz\*(RDzamSi+RDzFeSi) -Q\*(DeDzSi\*UDzSi-DeGrSi\*UGrSi));
- \*  
\* N1-ZN1 濃度 N1-ZN1 concentration (mol/m3) (4.2)  
EQUATION MolDzN1=Poroz\*VolDz\*UDzN1;\* N1-ZN1 溶解モル数 N1-ZN1 (mol)  
EQUATION d(MolDzN1, t) =  
terminator\*(-SAbent\*Poroz[rrr=rbent]\*(AlphN1[rrr=rbent]\*UN1[rrr=rbent]  
-AlphN1[rrr=rbent-dr]\*UN1[rrr=rbent-dr])/dr  
-Poroz\*VolDz\*(RDzMsN1+RDzStN1)  
-Q\*(DeDzN1\*UDzN1-DeGrN1\*UGrN1));
- \*  
\* N2-ZN2 濃度 N2-ZN2 concentration (mol/m3) (4.3)  
EQUATION MolDzN2=Poroz\*VolDz\*UDzN2;\* N2-ZN2 溶解モル数 N2-ZN2 (mol)  
EQUATION d(MolDzN2, t)=terminator\*(  
-SAbent\*Poroz[rrr=rbent]\*(AlphN2[rrr=rbent]\*UN2[rrr=rbent]  
-AlphN2[rrr=rbent-dr]\*UN2[rrr=rbent-dr])/dr  
-Poroz\*VolDz\*(RDzMsN2+RDzStN2)  
-Q\*(DeDzN2\*UDzN2-DeGrN2\*UGrN2)  
+Poroz\*VolDz\*KdcayN1\*(UDzN1+vDzStN1+vDzMsN1)\*  
exp((KdcayN2-KdcayN1)\*t));
- \*  
\* N3ZN3 濃度 N3ZN3 concentration (mol/m3) (4.4)  
EQUATION MolDzN3=Poroz\*VolDz\*UDzN3;\* N3ZN3 溶解モル数 N3ZN3 (mol)  
EQUATION d(MolDzN3, t) =terminator\*(  
-SAbent\*Poroz[rrr=rbent]\*(AlphN3[rrr=rbent]\*UN3[rrr=rbent]  
-AlphN3[rrr=rbent-dr]\*UN3[rrr=rbent-dr])/dr  
-Poroz\*VolDz\*(RDzMsN3+RDzStN3)  
-Q\*(DeDzN3\*UDzN3-DeGrN3\*UGrN3)  
+Poroz\*VolDz\*KdcayN2\*(UDzN2+vDzMsN2+vDzStN2)  
+(KdcayN2-KdcayN3)\*MolDzN3);
- \*  
\* アモルファスシリカ濃度 amorphous silica concentration (g/m3) (4.5)  
EQUATION MasDzamSi=Poroz\*VolDz\*vDzamSi;\* amSi 沈澱重量 mass (g)  
EQUATION d(MasDzamSi, t)=terminator\*(Poroz\*VolDz\*RDzamSi);
- \*  
\* 珪化鉄濃度 Fe silica concentration (g/m3) (4.6)  
EQUATION MasDzFeSi=Poroz\*VolDz\*vDzFeSi;\* FeSi 沈澱重量 mass (g)  
EQUATION d(MasDzFeSi, t)=terminator\*(Poroz\*VolDz\*RDzFeSi);
- \*  
\* 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 concentration (mol/m3) (4.7)  
EQUATION MolDzStN1=Poroz\*VolDz\*vDzStN1;\* StN1-ZN1 沈澱モル数 (mol)  
EQUATION d(MolDzStN1, t)=terminator\*(Poroz\*VolDz\*RDzStN1);
- \*  
\* 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 concentration (mol/m3) (4.8)  
EQUATION MolDzMsN1=Poroz\*VolDz\*vDzMsN1;\* MsN1-ZN1 沈澱モル数 (mol)  
EQUATION d(MolDzMsN1, t)=terminator\*(Poroz\*VolDz\*RDzMsN1);
- \*  
\* 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 concentration (mol/m3) (4.9)  
EQUATION MolDzStN2=Poroz\*VolDz\*vDzStN2;\* StN2-ZN2 沈澱モル数 (mol)  
EQUATION d(MolDzStN2, t)=terminator\*(Poroz\*VolDz\*RDzStN2);
- \*  
\* 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 concentration (mol/m3) (4.10)

```

EQUATION MolDzMsN2=Poroz*VolDz*vDzMsN2;* MsN2-ZN2 沈澱モル数 (mol)
EQUATION d(MolDzMsN2, t)=terminator*(Poroz*VolDz*RDzMsN2);
*
* 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 concentration (mol/m3) (4.11)
EQUATION MolDzStN3=Poroz*VolDz*vDzStN3;* StN3ZN3 沈澱モル数 (mol)
EQUATION d(MolDzStN3, t)=terminator*(Poroz*VolDz*RDzStN3
+(KdcayN2-KdcayN3)*MolDzStN3);
*
* 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 concentration (mol/m3) (4.12)
EQUATION MolDzMsN3=Poroz*VolDz*vDzMsN3;* MsN3ZN3 沈澱モル数 (mol)
EQUATION d(MolDzMsN3, t)=terminator*(Poroz*VolDz*RDzMsN3
+(KdcayN2-KdcayN3)*MolDzMsN3);
*
* -----
* (Block 4.7) 初期条件及び制約条件 Initial Conditions & Constraints
* -----
*
INITIAL Poroz =0.1; **VolDz*UDzSi0; Si mass (g)
INITIAL DensDz =2.7e6;
INITIAL PorozGr =0.1; **VolDz*UDzSi0; Si mass (g)
INITIAL DensGr =2.7e6;
*
* 濃度初期値 concentration initial value
INITIAL UDzSi=UDzSi0; * シリカ silica (g/m3)
INITIAL UDzN1=0; * N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL UDzN2=0; * N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL UDzN3=0; * N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL UGrSi=UDzSi;
INITIAL UGrN1=0;
INITIAL UGrN2=0;
INITIAL UGrN3=0;
*
INITIAL vDzamSi=vDzamSi0; * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
INITIAL vDzFeSi=0; * 珪化鉄濃度 Fe silica (g/m3)
INITIAL vDzStN1=0; * 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL vDzMsN1=0; * 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 (mol/m3)
INITIAL vDzStN2=0; * 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL vDzMsN2=0; * 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 (mol/m3)
INITIAL vDzStN3=0; * 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 (mol/m3)
INITIAL vDzMsN3=0; * 準安定N3ZN3 濃度 Ms-N3ZN3 (mol/m3)
*
INITIAL MasDzSi =Poroz*VolDz*UDzSi0; *Si mass (g)
INITIAL MolDzN1 =Poroz*VolDz*UDzN1; *N1 mol (mol)
INITIAL MolDzN2 =Poroz*VolDz*UDzN2; *N2 mol (mol)
INITIAL MolDzN3 =Poroz*VolDz*UDzN3; *N3 mol (mol)
INITIAL MasDzamSi=Poroz*VolDz*vDzamSi; *amSi mass (g)
INITIAL MasDzFeSi=Poroz*VolDz*vDzFeSi; *FeSi mass (g)
INITIAL MolDzStN1=Poroz*VolDz*vDzStN1; *StN1 mol (mol)
INITIAL MolDzMsN1=Poroz*VolDz*vDzMsN1; *MsN1 mol (mol)
INITIAL MolDzStN2=Poroz*VolDz*vDzStN2; *StN2 mol (mol)
INITIAL MolDzMsN2=Poroz*VolDz*vDzMsN2; *MsN2 mol (mol)
INITIAL MolDzStN3=Poroz*VolDz*vDzStN3; *StN3 mol (mol)
INITIAL MolDzMsN3=Poroz*VolDz*vDzMsN3; *MsN3 mol (mol)
*
INITIAL RfDzSi=1+(1-Poroz)/Poroz*DensDz*KdDzSi;*Si の遅延係数
INITIAL RfDzN1=1+(1-Poroz)/Poroz*DensDz*KdDzN1;*N1 の遅延係数
INITIAL RfDzN2=1+(1-Poroz)/Poroz*DensDz*KdDzN2;*N2 の遅延係数
INITIAL RfDzN3=1+(1-Poroz)/Poroz*DensDz*KdDzN3;*N3 の遅延係数

```

```

*
INITIAL RfGrSi=1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrSi;*Si    の遅延係数
INITIAL RfGrN1=1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrN1;*N1    の遅延係数
INITIAL RfGrN2=1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrN2;*N2    の遅延係数
INITIAL RfGrN3=1+(1-PoroGr)/PoroGr*DensGr*KdGrN3;*N3    の遅延係数
*
INITIAL BeDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi, uCoDzSiX/UDzSi, 1/RfDzSi);
INITIAL BeDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1, uCoDzN1X/UDzN1, 1/RfDzN1);
INITIAL BeDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2, uCoDzN2X/UDzN2, 1/RfDzN2);
INITIAL BeDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3, uCoDzN3X/UDzN3, 1/RfDzN3);
*
INITIAL DeDzSi=switch(RfDzSi*uCoDzSiX-UDzSi,
    (uCoDzSiX+(UDzSi-RfDzSi*uCoDzSiX)/(1+TrDzSi))/UDzSi, 1/RfDzSi);
INITIAL DeDzN1=switch(RfDzN1*uCoDzN1X-UDzN1,
    (uCoDzN1X+(UDzN1-RfDzN1*uCoDzN1X)/(1+TrDzN1))/UDzN1, 1/RfDzN1);
INITIAL DeDzN2=switch(RfDzN2*uCoDzN2X-UDzN2,
    (uCoDzN2X+(UDzN2-RfDzN2*uCoDzN2X)/(1+TrDzN2))/UDzN2, 1/RfDzN2);
INITIAL DeDzN3=switch(RfDzN3*uCoDzN3X-UDzN3,
    (uCoDzN3X+(UDzN3-RfDzN3*uCoDzN3X)/(1+TrDzN3))/UDzN3, 1/RfDzN3);
*
INITIAL RDzamSi=MyuDzSi*(BeDzSi*UDzSi-UDzamSiX)
    *(min(1, switch(UDzamSiX-BeDzSi*UDzSi, 1, 0))+hsmooth(vDzamSi, EPS));
INITIAL RDzFeSi=MyuDzFeSi*(BeDzSi*UDzSi-UDzFeSiX)
    *(min(1, switch(UDzFeSiX-BeDzSi*UDzSi, 1, 0))+hsmooth(vDzFeSi, EPS));
INITIAL RDzStN1=MyuDzStN1*(BeDzN1*UDzN1-UDzStN1X)
    *(min(1, switch(UDzStN1X-BeDzN1*UDzN1, 1, 0))+hsmooth(vDzStN1-1e-5, EPS));
INITIAL RDzMsN1=MyuDzMsN1*(BeDzN1*UDzN1-UDzMsN1X)
    *(min(1, switch(UDzMsN1X-BeDzN1*UDzN1, 1, 0))+hsmooth(vDzMsN1-1e-5, EPS));
INITIAL RDzStN2=MyuDzStN2*(BeDzN2*UDzN2-UDzStN2X)
    *(min(1, switch(UDzStN2X-BeDzN2*UDzN2, 1, 0))+hsmooth(vDzStN2-1e-5, EPS));
INITIAL RDzMsN2=MyuDzMsN2*(BeDzN2*UDzN2-UDzMsN2X)
    *(min(1, switch(UDzMsN2X-BeDzN2*UDzN2, 1, 0))+hsmooth(vDzMsN2-1e-5, 4.6672e-2));
INITIAL RDzStN3=MyuDzStN3*(BeDzN3*UDzN3-UDzStN3X)
    *(min(1, switch(UDzStN3X-BeDzN3*UDzN3, 1, 0))+hsmooth(vDzStN3-1e-5, EPS));
INITIAL RDzMsN3=MyuDzMsN3*(BeDzN3*UDzN3-UDzMsN3X)
    *(min(1, switch(UDzMsN3X-BeDzN3*UDzN3, 1, 0))+hsmooth(vDzMsN3-1e-5, EPS));
*
INITIAL DeGrSi=switch(RfGrSi*uCoGrSiX-UGrSi,
    (uCoGrSiX+(UGrSi-RfGrSi*uCoGrSiX)/(1+TrGrSi))/UDzSi, 1/RfGrSi);
INITIAL DeGrN1=switch(RfGrN1*uCoGrN1X-UGrN1,
    (uCoGrN1X+(UGrN1-RfGrN1*uCoGrN1X)/(1+TrGrN1))/UDzN1, 1/RfGrN1);
INITIAL DeGrN2=switch(RfGrN2*uCoGrN2X-UGrN2,
    (uCoGrN2X+(UGrN2-RfGrN2*uCoGrN2X)/(1+TrGrN2))/UDzN2, 1/RfGrN2);
INITIAL DeGrN3=switch(RfGrN3*uCoGrN3X-UGrN3,
    (uCoGrN3X+(UGrN3-RfGrN3*uCoGrN3X)/(1+TrGrN3))/UDzN3, 1/RfGrN3);
*
* 濃度制限値 concentration constraint value
CONSTRAINT UDzSi>=0;    * シリカ silica (g/m3)
CONSTRAINT UDzN1>=0;    * N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT UDzN2>=0;    * N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT UDzN3>=0;    * N3ZN3 (mol/m3)
CONSTRAINT vDzamSi>=0;    * アモルファスシリカ amorphous silica (g/m3)
CONSTRAINT vDzFeSi>=0;    * 珪化鉄濃度 Fe silica (g/m3)
CONSTRAINT vDzStN1>=0;    * 安定N1-ZN1 濃度 St-N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT vDzMsN1>=0;    * 準安定N1-ZN1 濃度 Ms-N1-ZN1 (mol/m3)
CONSTRAINT vDzStN2>=0;    * 安定N2-ZN2 濃度 St-N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT vDzMsN2>=0;    * 準安定N2-ZN2 濃度 Ms-N2-ZN2 (mol/m3)
CONSTRAINT vDzStN3>=0;    * 安定N3ZN3 濃度 St-N3ZN3 (mol/m3)

```

