

ニアフィールド核種移行評価コード

RELEASE



1992年9月

動力炉・核燃料開発事業団

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)1992

ニアフィールド核種移行評価コード
R E L E A S E

*大井 貴夫 *宮原 要 **梅木 博之

要 旨

ニアフィールドの核種移行評価コードRELEASE はガラス固化体から溶出した核種が緩衝材を経て、周辺岩盤に移行する挙動を解析するために開発されたものである。RELEASE では円筒座標系1次元の物質移動方程式を有限差分法を用いて数値的に解いている。従来のコードと比較したRELEASE コードの特徴は、ガラス固化体中の核種の崩壊による同位体存在比の経時変化に基づいて、溶解度や溶解速度を核種毎に割り当てることが可能なこと、及び緩衝材中での親核種の崩壊に伴う娘核種の沈澱現象を考慮できることである。本報告書ではRELEASE の数学モデル、解法について示すとともに、他のコードとのベンチマークの結果から、本コードの計算結果の妥当性について言及する。

*東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室

**本社 環境技術開発推進本部 処分研究グループ

目 次

	ページ
1. はじめに	1
2. RELEASE コード	1
2.1 概 要	1
2.2 モデル	2
2.2.1 基本方程式	2
2.2.2 ガラス固化体／緩衝材界面の境界条件	3
2.2.3 緩衝材／周辺岩盤界面の境界条件	4
2.2.4 ガラス固化体中の核種インベントリ	5
2.2.5 分割溶解度	6
2.3 解 法	6
3. RELEASE の検証	7
3.1 STRENG	7
3.2 比較計算	7
3.2.1 RELEASE とSTRENGの違い	8
3.2.2 コード間の違いに対する処理	8
3.2.3 計算条件	9
3.3 結 果	9
3.3.1 ケースa	9
3.3.2 ケースb	10
3.4 比較結果の検討	10
4. まとめ	11
5. 参考文献	12
記 号	
表、図	
付録1 緩衝材内側境界での核種フラックスの ガラス固化体の表面積への依存性	
付録2 ΔX 、 ΔT の設定方法	

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分においては、ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材からなる人工バリアと、天然の岩体を組み合わせた多重バリアシステム（図1-1 参照）により、人間環境から長期間安全に高レベル放射性廃棄物を隔離することが考えられている。多重バリアシステムの性能評価では、放射性核種が処分場から生物圏に至る種々のシナリオが想定される。これらのシナリオのうち最も重要なものと考えられているのは、「ガラス固化体が地層中の地下水と接触することにより、ガラス固化体に含まれる放射性核種が溶出し、その後地層中の移行を経て生物圏に至る」という地下水シナリオである。動力炉・核燃料開発事業団では地下水シナリオに対する多重バリアシステムの性能を評価する一環として、溶出した核種が緩衝材中を移動した後、周辺岩盤に移行する過程の解析を行うためのニアフィールド核種移行評価コードの開発に関する委託研究⁽¹⁾を行い、この委託研究を参考として以下の特徴を持った評価コードRELEASEを開発した。即ち、

- ガラス表面での核種の溶解度や溶解速度をガラス固化体中の核種の同位体存在比の経時変化を考慮して核種毎に割り当てることが可能なこと、
- 緩衝材中を核種が移行する際、親核種の崩壊による増分により娘核種の濃度が溶解度を越えた場合の沈澱現象を考慮できること、

である。ここでは、RELEASEの内容と簡単な例題を用いたコードの検証について示す。

2. RELEASE コード

2.1 概要

ニアフィールド核種移行評価コードRELEASEは、地下水シナリオに基づき緩衝材中の核種移行及び緩衝材から周辺岩盤への核種の放出挙動を評価することができる、1次元円筒座標系を用いた数値解析コードである。解法は有限差分法によっている。

RELEASEにおいて扱われる解析領域は、ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材、周辺岩盤からなるニアフィールドである。図2-1にRELEASEの解析領域の幾何形状を示す。ただし、オーバーパック領域については、核種移行解析上は無視されることが多く、その場合は、 $r = r_1$ において、ガラス固化体からの核種放出メカニズムに従って、緩衝材領域へ核種が移行するものとして扱われる。

RELEASEでは、ガラス固化体中の核種インベントリの経時変化、ガラス固化体から緩衝材への核種の放出率の経時変化、緩衝材または周辺岩盤中の核種の濃度の時間、空間変化及び

緩衝材外側から周辺岩盤への核種の放出率を計算することによって、ニアフィールドにおける核種移行挙動を解析することができる。これらの解析においては、緩衝材中で3核種までの崩壊連鎖と崩壊連鎖に伴って生じる沈澱現象について考慮することができる。緩衝材内側の境界条件としては、ガラス固化体からの核種の溶出に関する4つのタイプのモデルを、また緩衝材外側の境界においては、3種類の境界条件を扱うことが可能である。特にガラス固化体からの核種の溶出については、ガラス固化体中の核種の同位体存在比の経時変化に対応して、溶解速度や溶解度を各核種に割り当てることが可能である。

2.2 モデル

2.2.1 基本方程式

円筒座標系半径方向1次元においてRELEASEで扱っている基本方程式は緩衝材領域において(1)式のように表される。緩衝材中の核種の移行メカニズムは拡散であり、核種の緩衝材への収着は線型吸着で扱えるものと仮定している。

$$\begin{aligned}
 R_i \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial Cp_i}{\partial t} &= Dp_i \left(\frac{\partial^2 C_i}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) \\
 &\quad - \lambda_i R_i C_i + \lambda_{i-1} R_{i-1} C_{i-1} \\
 &\quad - \lambda_i Cp_i + \lambda_{i-1} Cp_{i-1} \quad \dots\dots\dots (1)
 \end{aligned}$$

遅延係数は次式で定義される。

$$R_i = 1 + \frac{1 - \epsilon}{\epsilon} \rho Kd_i \quad \dots\dots\dots (2)$$

沈澱現象についてはHopkirk等のモデル⁽²⁾を参考とし、沈澱の生成/再溶解が瞬時に起こること、沈澱物の崩壊生成、沈澱物が拡散、吸着しないことを仮定した。沈澱物の生成、再溶解は以下の式で示される。沈澱の生成を判断する溶解度は、核種iのガラス固化体中の同位体存在比に従って割りあてられたものを用いることができる。

$$\frac{\partial Cp_i}{\partial t} = U(Cp_i)k(C_i - C_i^*) \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで $U(C_{pi})$ は沈殿の生成/再溶解の判定を行なう関数で次のように定義される。

$$U(C_{pi}) = \begin{cases} 1 & (C_{pi} > 0 \text{ または } C_i > C_i^*) \\ 0 & (C_{pi} = 0 \text{ かつ } C_i \leq C_i^*) \end{cases} \dots\dots\dots (4)$$

また、周辺岩盤中での核種移行は次式により扱われている。

$$R_i^R \frac{\partial C_i^R}{\partial t} = D_L \left(\frac{\partial^2 C_i^R}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_i^R}{\partial r} \right) - U \frac{\partial C_i^R}{\partial r} - \lambda_i R_i^R C_i^R + \lambda_{i-1} R_{i-1}^R C_{i-1}^R \dots\dots\dots (5)$$

周辺岩盤での遅延係数 R_i^R は、緩衝材と同様、線型吸着を仮定し、次のように定義されている。

$$R_i^R = 1 + \frac{1 - \epsilon^R}{\epsilon^R} \rho^R K_{d,i}^R \dots\dots\dots (6)$$

2.2.2 ガラス固化体/ 緩衝材界面の境界条件

ガラス固化体からの核種の溶出は上記基本方程式(1)の内側境界条件として与えられる。RELEASE においては核種の溶出形態に従って、以下の4つのモデルを扱うことができる。

(1) 溶解速度

核種がガラス母相と調和的に溶解する場合は、その溶解速度がガラスの溶解速度と一致すると仮定し、次式のように緩衝材内側境界での空隙中の核種フラックスを与える。

$$J^0_i = L \times f_{i0} \times P_i(t) ; r = r_1 \dots\dots\dots (7)$$

(2) ガラス固化体表面積の経時変化を考慮した溶解速度

ガラス固化体からの核種フラックスが、ガラスの溶解に伴って経時変化するガラス固化体の表面積に依存すると仮定し、次式により緩衝材内側境界での空隙中核種フラックスを与える。(付録1参照)

$$J^0_i = \frac{3 \times L \times (L \times t - \rho^g \times R_0)^2}{(\rho^g \times R_0)^3 \times \epsilon \times S} N_i \times f_i \times P_i(t); \quad r = r_1 \dots (8)$$

(3) 溶解度

核種のガラス固化体からの溶解が溶解度で制限されることを仮定し、緩衝材内側での核種の濃度を核種の溶解度で一定とする。

$$C^0_i = C_{i0}^* \times P_i(t); \quad r = r_1 \dots (9)$$

(4) 一次反応

ガラス固化体からの核種の溶解が初期段階ではガラスの溶解を律速する元素の濃度に依存し(一次反応)、長期的にはガラスの長期溶解速度に依存することを仮定して緩衝材内側境界での空隙中核種フラックスを与える。

$$J^0_i = L \times f_{i0} \times P_i(t) \times \left[1 - \frac{C_g}{C_g^*} \right] + K_R \times f_{i0} \times P_i(t); \quad r = r_1 \dots (10)$$

2.2.3 緩衝材/周辺岩盤界面の境界条件

RELEASE では、以下の3つの境界条件を扱うことができる。

(1) 核種濃度 0

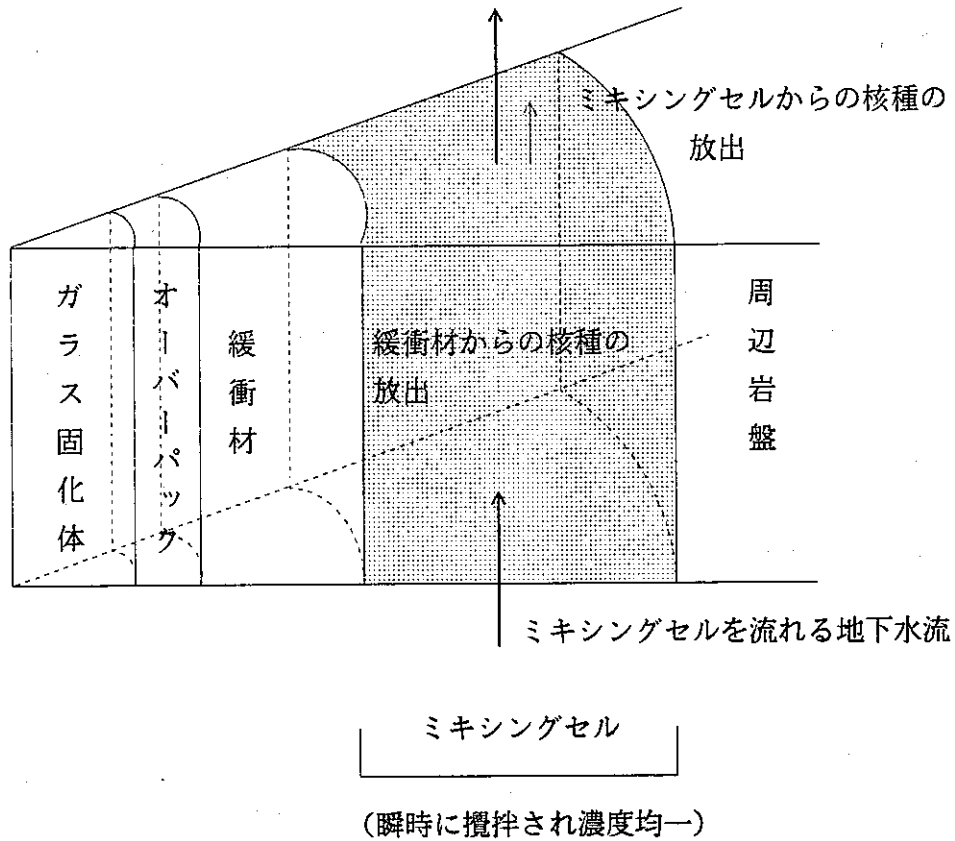
界面における核種の濃度が瞬時に0になることを仮定し、次式のように境界条件を与える。

$$C_i = 0; \quad r = r_2 \dots (11)$$

(2) ミキシングセル

下図のように周辺岩盤中に、ある体積の領域(ミキシングセル)を設定し、緩衝材から放出された核種はこの領域内で瞬時に均一に攪拌され、この領域を流れる一定量の地下水により運びさらされると考える。領域内の核種濃度は緩衝材から周辺岩盤への核種の放出率、ミキシングセルの体積、ミキシングセル中の地下水流速に依存して決まる。

ミキシングセルを流れる地下水流



(3) 岩盤内任意地点での核種濃度 0

岩盤内部の任意の地点で核種濃度 0 を仮定。

$$C_i = 0 ; \quad r = r_s \quad \dots\dots\dots (12)$$

この場合、緩衝材／周辺岩盤界面では、濃度とフラックスが連続するように(1)式と(5)式が同時に解かれる。

2.2.4 ガラス固化体中の核種インベントリ

2.2.2で述べた境界条件の設定にあたって用いられるガラス固化体中の核種インベントリは、それぞれの核種の生成・崩壊及びガラス固化体からの溶出により時間的に変化する。これらの物質収支をとることによってガラス固化体中の核種のインベントリの経時変化は次式により計算される。

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i - \epsilon S J^0_i \quad \dots\dots\dots (13)$$

2.2.5 分割溶解度

核種の溶解度はガラス固化体からの核種の溶解や、緩衝材中での核種の沈澱生成の際の指標として必要である。溶解度は元素に対して与えられ、同位体存在比に従って各核種に分配される。核種の同位体存在比はその核種の半減期や崩壊系列、ガラス固化体からの溶出や緩衝材中での移行挙動に依存してニアフィールド内で時間的、空間的に変化するが、ここでは簡単のため、ガラス固化体中の核種の同位体存在比の経時変化をもってニアフィールド内全ての領域での同位体存在比を代表させている。ガラス固化体中の核種の同位体存在比については、核種崩壊生成評価コード ORIGEN2⁽³⁾ を用いて計算し、経時変化を予めテーブルとして作成しておく。このテーブルはデータセットとしてファイル化され、RELEASE を起動させると各時間ステップ毎にこのファイルを参照し、対応する同位体存在比を引用するようになっている。

2.3 解法

上述の方程式(1)及び(5)は距離に対して離散化された後、与えられた境界条件のもとでクラック・ニコルソン法を用いて解かれる。図2.1に示した解析領域に対して、例えば(1)式について離散化された式は以下ようになる。

$$\begin{aligned} \epsilon R_i V_n \frac{C_{i,n}^{m+1} - C_{i,n}^m}{\Delta t} = & \epsilon S_{n-1} J_{i,n-1} - \epsilon S_n J_{i,n} \\ & - \epsilon R_i V_n \lambda_i C_{i,n}^m \\ & + \epsilon R_{i-1} V_n \lambda_{i-1} C_{i-1,n}^m \dots\dots\dots (14) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} V_n &= 2 \pi X_n \Delta X h \\ X_n &= r_1 + (n-1) \Delta X + \Delta X/2 \\ S_{n-1} &= 2 \pi (X_n - \Delta X/2)h \\ S_n &= 2 \pi (X_n + \Delta X/2)h \\ J_{i,n-1} &= -Dp(C_n - C_{n-1})/\Delta X \\ J_{i,n} &= -Dp(C_{n+1} - C_n)/\Delta X \end{aligned}$$

(3)式及び境界条件も同様に離散化される。(3)式の離散化においては、沈澱の生成/再溶解を瞬時の反応と仮定し、反応速度 kを1/Δt と等しく与えることとした。

計算のフローを図 2-2に示す。分割溶解度は、予めORIGEN 2で計算されたデータテーブルを参照して、各時間メッシュに相当する同位体存在比を内挿により求め、元素の溶解度に掛け合わせるにより与えられる。沈澱現象は境界条件及び基本式に基づいて各時間ステップ毎に計算された核種濃度を(3)式に当てはめることにより扱われる。時間の分割の幅 (Δt) と空間の分割の幅 (Δx)は、拡散係数、分配係数、緩衝材の空隙率等を用いて設定される(付録2 参照)。

3. RELEASEの検証

緩衝材中の核種移行評価コードRELEASE と同様、緩衝材中の核種移行評価を行うために開発され、NAGRA(放射性廃棄物貯蔵全国組合：スイス)における解析等、使用実績の豊富なSTRENG⁽⁴⁾とのベンチマーク計算により、RELEASE の検証を試みた結果について述べる。

3.1 STRENG

STRENGはNAGRA の委託によりIntera Sciences が開発した緩衝材中の核種移行評価コードであり、以下の特徴を持つ。

STRENGは拡散による緩衝材中の核種の移行を一次元の円筒座標系において有限差分法により解法するコードである。STRENGで扱う解析領域の幾何形状を図 3-1に示す。STRENGでは、ガラス固化体／緩衝材界面における境界条件を核種濃度として与える。核種の濃度は、ガラス固化体からの核種の溶解が調和的であることを仮定し、ガラス固化体／緩衝材界面において設定した領域内(マスバランス領域)での物質収支から求められる。その際、核種濃度は溶解度を越えないように沈澱することによって制限される。溶解度についてはマスバランス領域内に溶解した同位体の存在比を用いて、核種毎に分割した溶解度を与えることができる。また、緩衝材／周辺岩盤界面では濃度0またはミキシングセルを境界条件として扱うことができる。これらの境界条件に対して、緩衝材中の核種濃度分布、緩衝材外側からの核種の放出率を計算することができる。このようにSTRENGはRELEASE と共通な点も多く、RELEASE の検証のためのベンチマークを行うのに適している。

3.2 比較計算

比較計算においては、2つのコードの違いを明確にした上で、計算条件およびデータを統一する必要がある。以下、2つのコードの違いと比較計算のための条件及びデータを示す。

3.2.1 RELEASEとSTRENGの違い

表 3-1に RELEASEとSTRENGの特徴の比較をまとめて示す。ベンチマークを行う上で、問題となる2つのコードの主な違いは以下の通りである。

- ① STRENGでは緩衝材中での沈澱現象を評価することができない。
- ② ガラス固化体から緩衝材への核種の放出率の計算において、STRENGは仮想的にマスバランス領域を設定している。
- ③ STRENGのマスバランス領域中の核種の濃度（内側境界濃度）は必ずしも溶解度にはならない。マスバランス領域内の核種濃度はガラス固化体の調和溶解による核種の流入とこの領域から緩衝材への流出、及び崩壊を考えた物質収支から計算され、溶解度を越える場合は沈澱することにより溶解度で制限される。ガラス固化体の調和溶解によるマスバランス領域内への核種の流入については、RELEASE で扱っている境界条件である溶解速度（2.2.2(1)参照）の場合と同じ(7)式で与えられる。

3.2.2 コード間の違いに対する処理

上述の違いを考慮し、比較計算では、まず、沈澱現象、分割溶解度は扱わないこととした。次に、RELEASE の計算ではマスバランス領域を考慮していないことから、緩衝材内側の表面積をガラス固化体の表面積と等しく与えることとした。STRENGにおけるマスバランス領域の影響はマスバランス領域の幅 d が小さいことから無視することとした。

ガラス固化体の表面積 S_G はガラス固化体の半径を r_0 、高さを H とすると

$$S_G = 2 \pi r_0 H + 2 \pi r_0^2 = 2 \pi r_0 (H + r_0) \dots\dots\dots (15)$$

一方、マスバランス領域の表面積 S_M はガラス固化体中心からマスバランス領域外側までの半径を R ($R = r_0 + d$) とすると

$$S_M = 2 \pi R H + 2 \pi R^2 = 2 \pi R (H + R) = 2 \pi (r_0 + d)(H + r_0 + d) \dots (16)$$

ここで $S_G \simeq S_M$ となるように d を設定する。

緩衝材内側の境界条件については核種の溶解度を与えることとし、STRENGではマスバランス領域内の核種の濃度が速やかに溶解度になるようパラメータ値を設定した。

3.2.3 計算条件

3.2.2に示した処理を行なうことにより、次のような条件の下で比較計算を行なった。

① オーバーパックの破損時期	処分後1000年
② 対象核種	$^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U}$
③ 境界条件	{ 緩衝材内側境界条件；溶解度 緩衝材外側境界条件；濃度0
④ 緩衝材のメッシュ分割数	16

比較計算に用いた入力データを表 3-2にまとめて示す。

STRENGのマスバランス領域内核種濃度を溶解度に設定するため、予察解析を行ない、特に親核種である ^{243}Am のガラス固化体中インベントリ及び溶解度を調整することにより ^{243}Am の崩壊による ^{239}Pu の濃度が過飽和になる場合（ケースa）と過飽和にならない場合（ケースb）を設定した。

3.3 結果

3.3.1 ケースa

RELEASE 及びSTRENGの計算結果として緩衝材外側からの核種の放出率の経時変化をそれぞれ図 3-2、図 3-3に示す。また、最大放出率(Bq/y)及びそれが出現するまでの時間(y)の比較を表 3-3に、一例として、 3×10^5 年後における放出率の比較を表 3-4に示す。さらに、緩衝材内側境界における ^{243}Am 濃度がガラス固化体中インベントリの枯渇により溶解度を下回るまでの時間を表 3-5に示す。

図 3-2、図 3-3の比較から以下のことがわかる。

- ① 放出率の経時変化の傾向は両コードでよく一致する。
- ② RELEASE 及びSTRENGの両結果ともに、 ^{243}Am の溶解度が ^{239}Pu の溶解度よりも大きいため、 ^{243}Am が緩衝材中に放出されている間、緩衝材中において過飽和状態が形成され ^{239}Pu の放出率が大きくなっている。また、 ^{239}Pu が緩衝材中において過飽和状態を形成している間、 ^{239}Pu の崩壊量が過剰になり、緩衝材中において ^{235}U の過飽和状態が形成されることにより ^{235}U の放出率が大きくなっている。

また、表 3-3、表 3-4、表 3-5から以下のことがわかる。

- ③ RELEASE による ^{243}Am 、 ^{239}Pu 、 ^{235}U の最大放出率の値はSTRENGの値のそれぞれ、4.0 倍、4.3 倍、5.9 倍になっている。
- ④ 3×10^5 年における結果についてはほぼ一致し、RELEASE の計算による ^{243}Am 、 ^{239}Pu 、 ^{235}U の放出率の値はSTRENGの値のそれぞれ、1.0 倍、1.3 倍、1.5 倍となっている。
- ⑤ RELEASE の結果はSTRENGの結果に比べて緩衝材内側境界における ^{243}Am 濃度が溶解度を下回る時期が約 1 万年遅いことがわかる。

3.3.2 ケース b

RELEASE 及びSTRENGの計算結果として、ケース a と同様、緩衝材外側からの核種の放出率の経時変化をそれぞれ図 3-4、図 3-5に示す。最大放出率(Bq/y)及びそれが出現するまでの時間(y) の比較を表 3-6に、 ^{243}Am の内側境界濃度が溶解度を下回る時期を表 3-7に示す。

図 3-4、図 3-5の比較から以下のことがわかる。

- ① 放出率の経時変化の傾向は両コードでよく一致する。
- ② RELEASE 及びSTRENGの両結果ともに、 ^{243}Am 溶解度が ^{239}Pu の溶解度よりも小さいため、緩衝材中において顕著な過飽和状態は形成されず、図 3-2あるいは図 3-3に見られるような ^{239}Pu の過剰放出はみられない。

また、表 3-6、表 3-7から以下のことがわかる。

- ③ RELEASE の ^{243}Am 、 ^{239}Pu 、 ^{235}U の最大放出率の値はSTRENGの値のそれぞれ、4.4 倍、1.4 倍、1.5 倍になっている。
- ④ RELEASE の結果はSTRENGの結果に比べて内側境界における ^{243}Am の濃度が溶解度を下回る時期が 3 万年遅い。

3.4 比較結果の検討

RELEASEとSTRENGの計算結果の比較において、最大放出率が異なった原因は以下のように考えられる。

STRENGでは、マスバランス領域内の核種の濃度は、ガラス固化体の調和溶解によりマスバランス領域に供給される量と、緩衝材中への拡散により領域から散逸する量、及び崩壊により系内で消滅する量、さらに溶解度を越えた量の沈殿のバランスにより決定される。 ^{243}Am

の場合、溶解開始直後はこの濃度が溶解度を上回り、緩衝材内側境界濃度は溶解度で制限される。しかし、一定の時間を経過するとガラス固化体中の ^{243}Am は崩壊により減衰し、ガラス固化体と調和的に溶解する ^{243}Am の溶解量はマスバランス領域で溶解度を維持するために必要な量を下回る。

一方、RELEASE の場合はガラス固化体中の ^{243}Am のインベントリが溶解度を満たさなくなるまでは溶解度で溶出するように設定されている。そのため、RELEASE の場合に比べて STRENGの方が緩衝材内側境界濃度が溶解度以下になる時期が早くなる。このことは、STRENG の場合はRELEASE の場合に比べてガラス固化体中で崩壊する ^{243}Am の量が多いことを意味し、そのため緩衝材に放出される ^{243}Am 量は減少して、最大放出率は低くなる。

^{239}Pu 、 ^{235}U は ^{243}Am よりも半減期が長いので、インベントリによるこれらの影響は小さい。

ケース a では娘核種である ^{239}Pu 、 ^{235}U の溶解度が低く、 ^{243}Am の緩衝材中での崩壊により著しい過飽和状態が発生する。STRENGの場合、緩衝材に放出される ^{243}Am の量が少ないため、緩衝材中で崩壊する量は少なくなる。その結果、RELEASE の場合に比べて過飽和状態の形成が緩やかになり、緩衝材からの核種の放出率は小さくなる。

ケース b では著しい過飽和状態が発生しないため、 ^{239}Pu 、 ^{235}U の放出率はそれぞれの溶解度に依存する。従って、 ^{243}Am の緩衝材への放出量の減少の影響はほとんど見られない。この場合、RELEASE と STRENG の計算結果は殆んど等しくなっている。また、このことはケース a において、過飽和状態が解消された時点で ^{239}Pu 、 ^{235}U の放出率に関する両コードの計算結果がほぼ等しくなることからわかる。

以上のことから、ベンチマークの結果、緩衝材内側境界における濃度設定に関する両コードの差に注意すれば、RELEASE の計算結果の妥当性をSTRENGとの比較により検証することができたと考えられる。

4. まとめ

緩衝材中の沈澱現象及び経時変化する同位体存在比を考慮した緩衝材中の核種移行評価コードRELEASE の内容を示した。また、沈澱現象及び経時変化する同位体存在比を考慮しない場合について、RELEASE の計算結果と同様の計算コードSTRENGの計算結果との比較を行った。比較の結果、RELEASE とSTRENGの計算結果は緩衝材内側境界濃度の設定の方法の違いに基づく差を考慮すれば良く一致していると考えられ、RELEASE コードの検証を行うことができた。

5. 参考文献

- (1) 日揮(株)1987：ニアフィールド核種移行挙動評価モデルの開発（委託研究報告書）.
PNC-SJ4281 87-001.
- (2) Hopkirk, R. J., D. J. Gilby, and W. H. Wagner. 1986. Modelling of Solute Transport in the Near field of a High Level Waste Repository. Nagra Technical Report, NTB 85-26.
- (3) Croff, A. G. 1980. ORIGEN-2 A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code. ORNL-5621.
- (4) Grindrod, P., M. Williams, M. Impey, and H. Grogan. 1991. STRENG: A Source Term Model for Vitrified High Level Waste. NAGRA Technical Report 90-48.

記 号

C_i	: 緩衝材空隙水中の核種濃度 (沈澱物の濃度は含まない)	(kg/m ³)
C_{pi}	: 緩衝材空隙水中の核種の沈澱物の濃度	(kg/m ³)
D_{pi}	: 緩衝材空隙水中の拡散係数	(m ² /y)
λ_i	: 核種の崩壊定数	(1/y)
R_i	: 核種の遅延係数	(-)
i	: i 番目の核種	
t	: 処分後の経過時間	(y)
r	: ガラス固化体中心からの距離	(m)
ε	: 緩衝材の空隙率	(-)
ρ	: 緩衝材の真密度	(kg/m ³)
Kd_i	: 分配係数	(m ³ /kg)
k	: 沈澱、再溶解の反応速度	(1/y)
C_i^*	: 核種の溶解度 ($C_{i0}^* \times P_i(t)$)	(kg/m ³)
C_{i0}^*	: 元素の溶解度	(kg/m ³)
$P_i(t)$: ガラス固化体中の核種同位体存在比	(-)
C^R_i	: 岩盤空隙水中の核種濃度	(kg/m ³)
D_L	: 分散係数	(m ² /y)
U	: 岩盤中地下水流速 (ダルシー速度)	(m/y)
R^R_i	: 岩盤中での遅延係数	
ε^R	: 岩盤の空隙率	
ρ^R	: 岩盤の密度	(kg/m ³)
Kd^R_i	: 岩盤に対する分配係数	(m ³ /kg)
J^0_i	: 緩衝材内側境界での空隙中核種フラックス	(kg/m ² /y)
L	: ガラスの初期溶解速度	(kg/m ² /y)
f_{i0}	: ガラス固化体に含まれる元素の重量分率	
r_1	: ガラス固化体中心から緩衝材内側までの距離	(m)
ρ^G	: ガラス固化体の密度	(kg/m ³)
R_0	: 体積等価球形の半径	(m)
S	: ガラス固化体の表面積	(m ²)
N_i	: ガラス固化体中の核種インベントリ	(kg)
C^0_i	: 緩衝材内側境界での核種の濃度	(kg/m ³)
C_G^*	: ガラスの溶解を律速する元素の溶解度	(kg/m ³)
C_G	: ガラスの溶解を律速する元素の緩衝材内側境界の濃度	(kg/m ³)
K_R	: ガラスの長期溶解速度	(kg/m ² /y)
r_2	: ガラス固化体中心から緩衝材外側までの距離	(m)
r_3	: ガラス固化体中心から岩盤内部の任意の地点までの距離	(m)
V_n	: n 番目のメッシュの体積	(m ³)
X_n	: ガラス固化体中心から緩衝材中の n 番目 のメッシュの中心までの距離	(m)
ΔX	: 空間 (緩衝材または周辺岩盤) の分割幅	(m)
Δt	: 時間の分割幅	(y)
h	: 緩衝材の高さ	(m)
C_{in}^m	: m 番目の計算時間での n 番目のメッシュ内の核種 i の濃度	(g/m ³)
S_{n-1}	: n 番目のメッシュ内側の表面積	(m ²)
S_n	: n 番目のメッシュ外側の表面積	(m ²)
J_{in-1}	: n 番目のメッシュ内側の核種フラックス	(kg/m ² /y)
J_{in}	: n 番目のメッシュ外側の核種フラックス	(kg/m ² /y)

表 3 - 1 RELEASE と STRENG の特徴の比較

コード	RELEASE	STRENG
解 法	有限差分	有限差分
評価座標系	一次元円筒座標系	一次元円筒座標系
緩衝材中の核種移行メカニズム	拡 散	拡 散
内側境界条件	(1)溶解速度 (2)溶解度 (3)一次反応 (4)ガラス固化体の表面積に依存した溶解速度	(1)核種濃度 (マスバランス領域内で、溶解度を越えた量は沈澱させる)
外側境界条件	(1)濃度 0 (2)ミキシングセル (3)岩体内部で濃度 0	(1)濃度 0 (2)ミキシングセル
分割溶解度	経時変化するガラス固化体中の核種の同位体存在比で分割	マスバランス領域内の同位体存在比で分割
緩衝材中での核種の沈澱現象	考 慮	無 視

表 3 - 2 比較計算に用いた入力データ

ガラス固化体の半径(cm)	21.5
ガラス固化体の高さ(cm)	103.3
緩衝材の厚さ(cm)	98.0
緩衝材の内側表面積(cm ²)	1.7 × 10 ⁴
緩衝材の真密度 (g/ cm ³)	2.7
ガラス固化体の重量(g)	4.12 × 10 ⁵
ガラス固化体の密度(g/ cm ³)	2.7
ガラス固化体長期浸出速度(g/ cm ² /d)	5.0 × 10 ⁻⁷
マスバランス領域の幅(cm)	0.5
緩衝材の空隙率	0.333
緩衝材中での実効拡散係数(cm ² /s)	3.0 × 10 ⁻⁶

(ケースa)

	半 減 期 (y)	ガラス固化体中 インベントリ (g)	溶 解 度 (g/ m ³)	分 配 係 数 (mℓ/g)
Am-243	7.38E+03	9.568E+02	1.1E-02	10000
Pu-239	2.41E+04	4.623E+01	8.9E-06	1000
U-235	7.04E+08	1.937E+01	1.0E-04	100

(ケースb)

	半 減 期 (y)	ガラス固化体中 インベントリ (g)	溶 解 度 (g/ m ³)	分 配 係 数 (mℓ/g)
Am-243	7.38E+03	9.568E+01	1.1E-07	10000
Pu-239	2.41E+04	4.623E+01	8.9E-06	1000
U-235	7.04E+08	1.937E+01	1.0E-04	100

表 3 - 3 最大放出率及びそれが出現するまでの時間

核 種	RELEASE		STRENG	
	最大放出率(Bq/y)	時間 (y)	最大放出率(Bq/y)	時間 (y)
^{243}Am	1.6×10^2	8.0×10^4	4.0×10^1	7.0×10^4
^{239}Pu	1.3×10^6	5.0×10^4	3.0×10^5	5.0×10^4
^{235}U	1.0×10^2	4.3×10^4	1.7×10^1	4.0×10^4

表 3 - 4 3×10^5 年後における放出率

核 種	RELEASE	STRENG
	放出率(Bq/y)	放出率(Bq/y)
^{243}Am	5.9×10^{-6}	5.9×10^{-6}
^{239}Pu	4.0×10^2	3.0×10^2
^{235}U	3.6×10^{-1}	2.4×10^{-1}

表 3 - 5 緩衝材内側境界における ^{243}Am の濃度が溶解度を下回るまでの時間

時間 (y)	RELEASE	STRENG
		3.0×10^4

表 3 - 6 最大放出率及びそれが出現するまでの時間

	RELEASE	STRENG
核 種	最大放出率 (Bq/y)	最大放出率 (Bq/y)
²⁴³ Am	2.2×10^{-3}	5.0×10^{-4}
²³⁹ Pu	4.1×10^2	3.0×10^2
²³⁵ U	3.6×10^{-1}	2.4×10^{-1}

表 3 - 7 緩衝材内側境界における ²⁴³Am の濃度が溶解度を下回る時期

	RELEASE	STRENG
時間 (y)	1.3×10^5	1.0×10^5

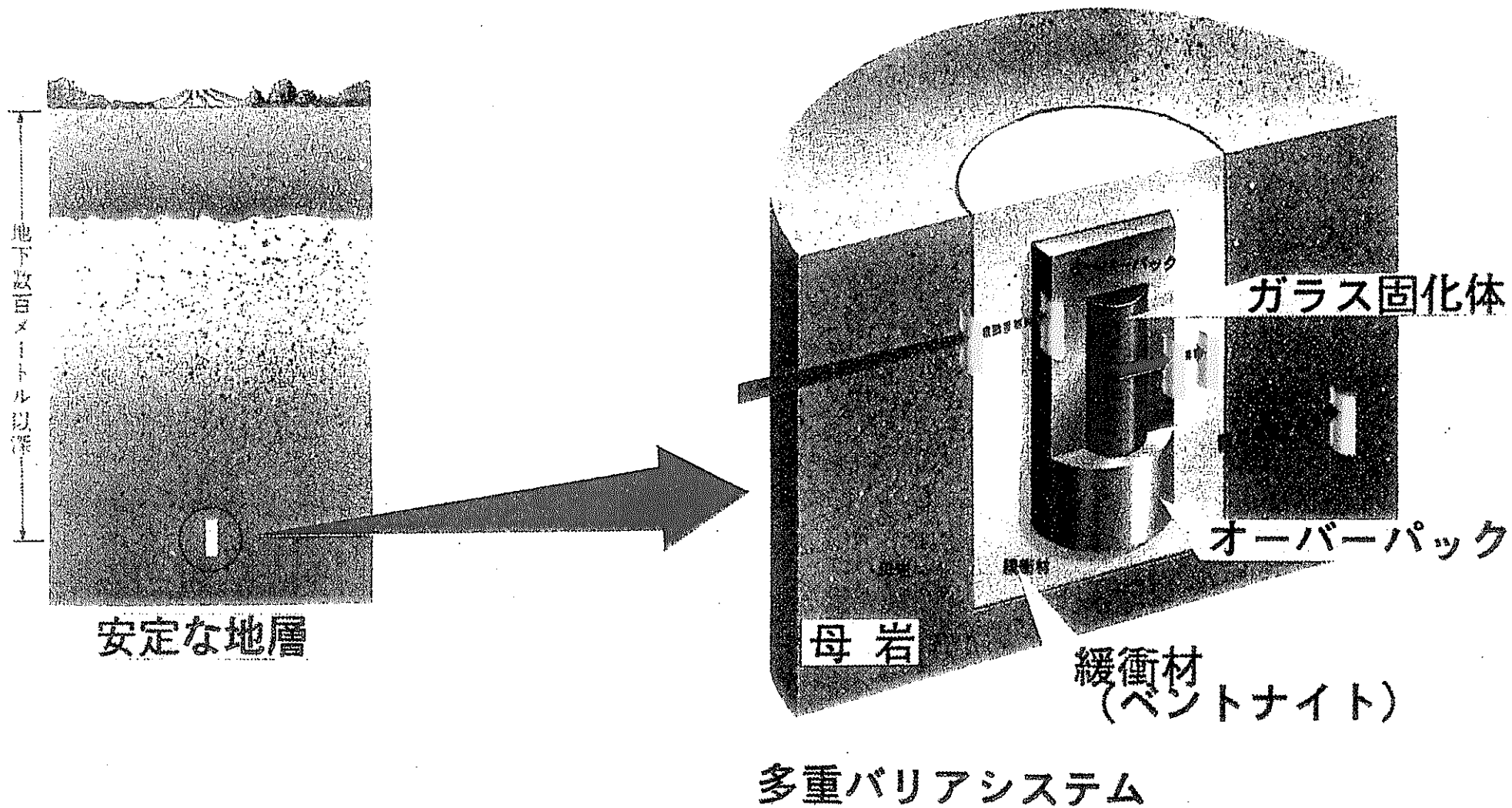


図1-1 地層処分における多重バリアシステムの概念

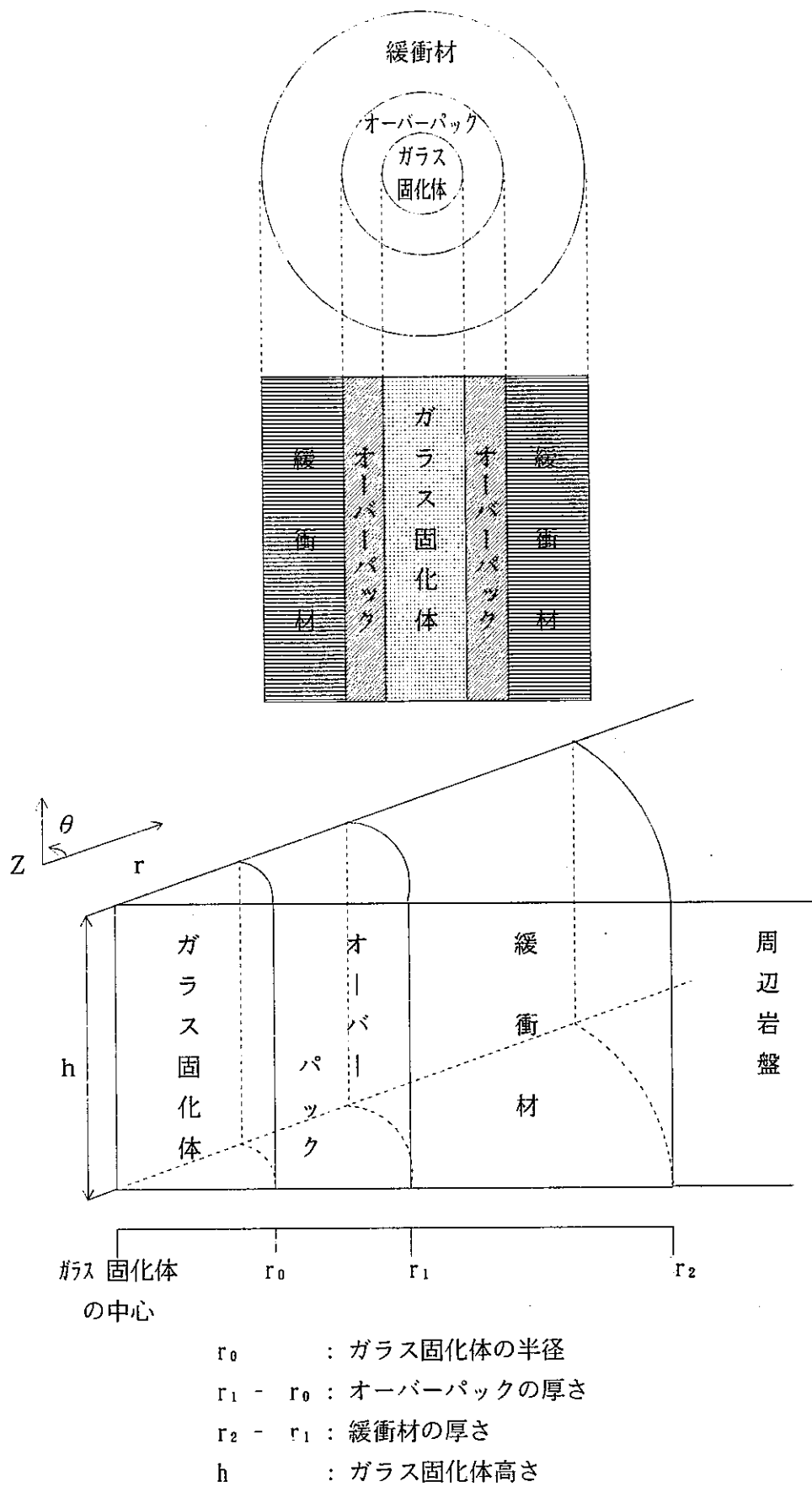


図 2 - 1 RELEASEの解析対象の幾何形状

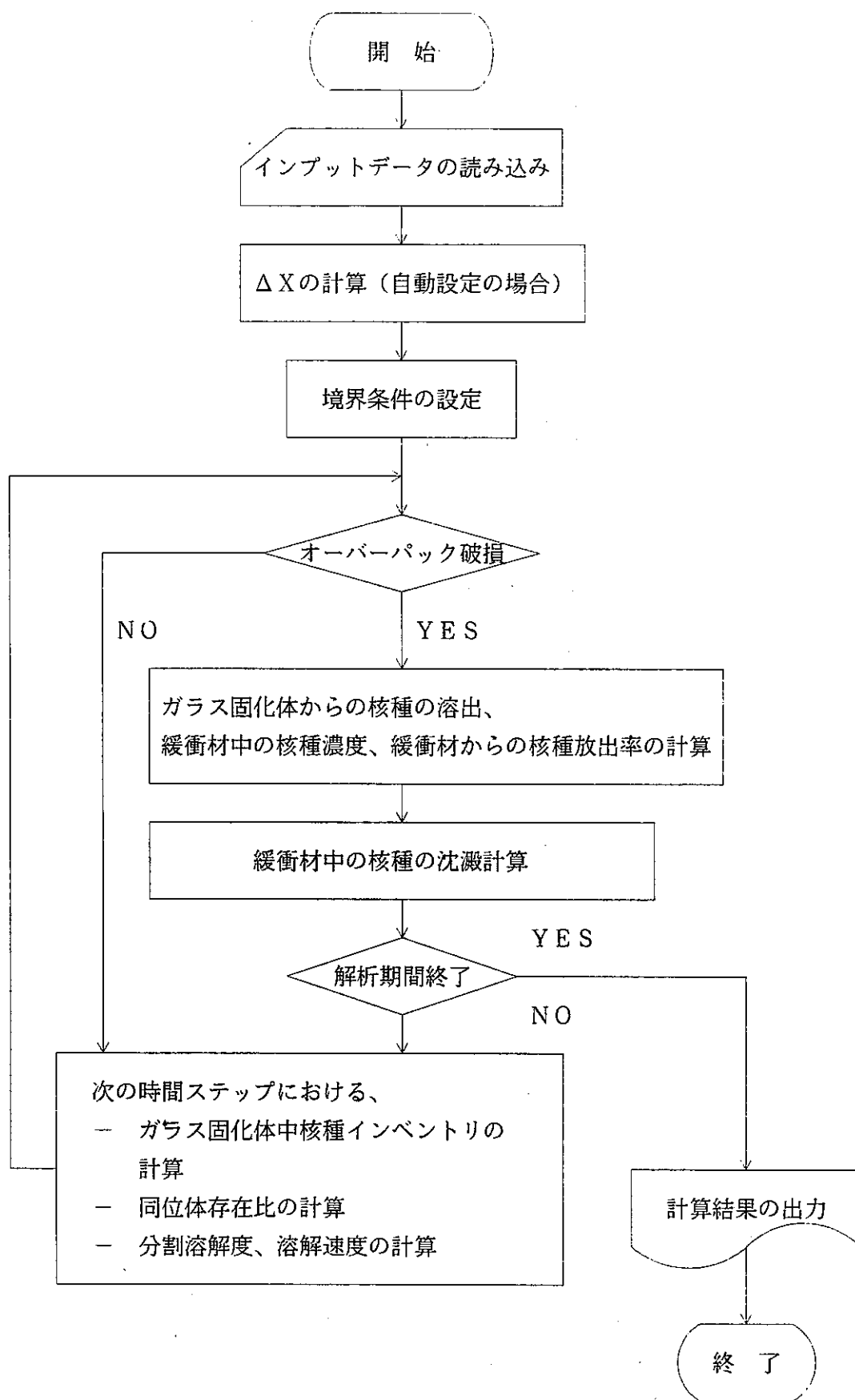


図2-2 計算のフロー

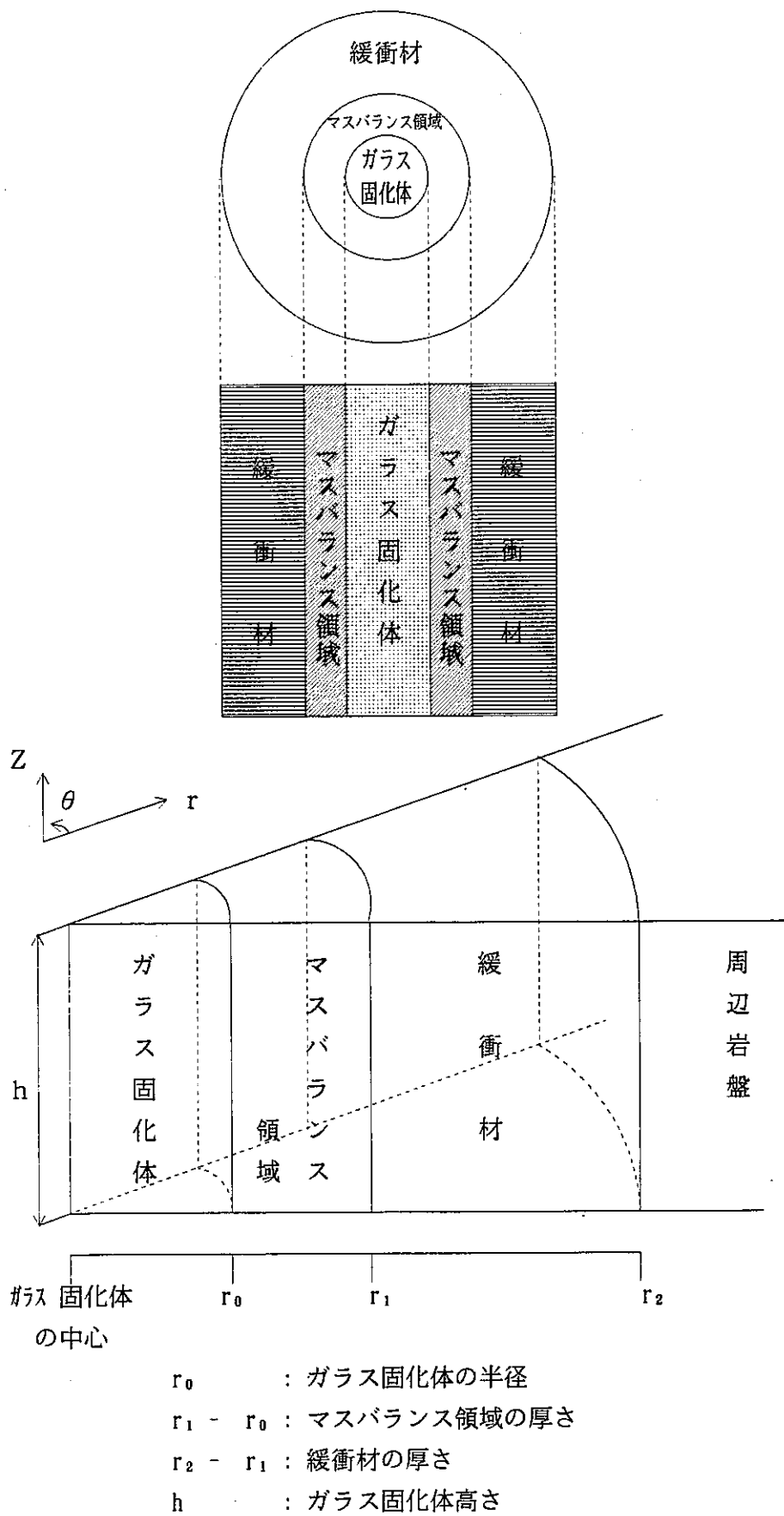


図3-1 STRENGで扱う解析領域の幾何形状

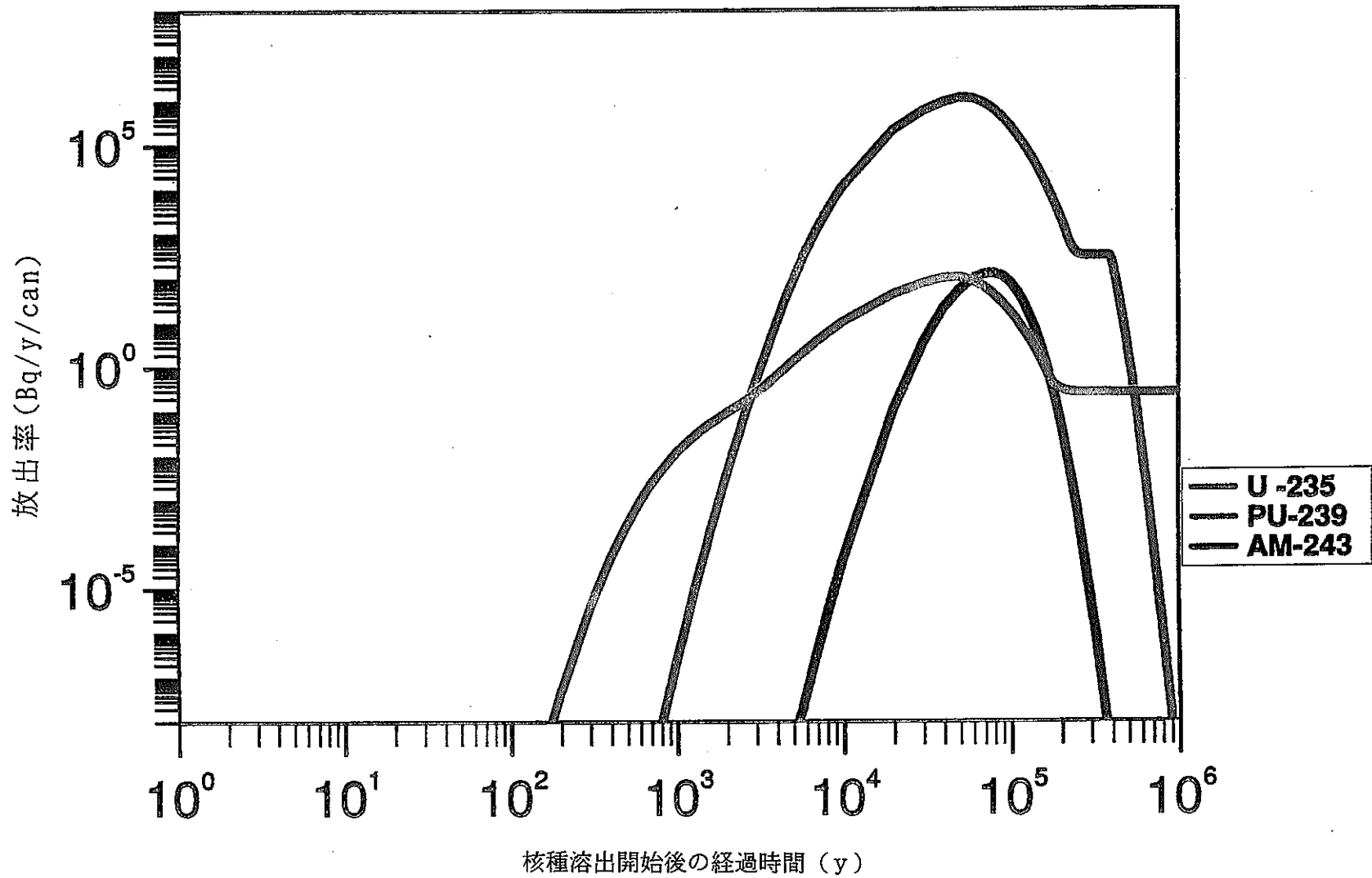


図3-2 緩衝材外側からの核種の放出率の経時変化 (RELEASE: ケース a)

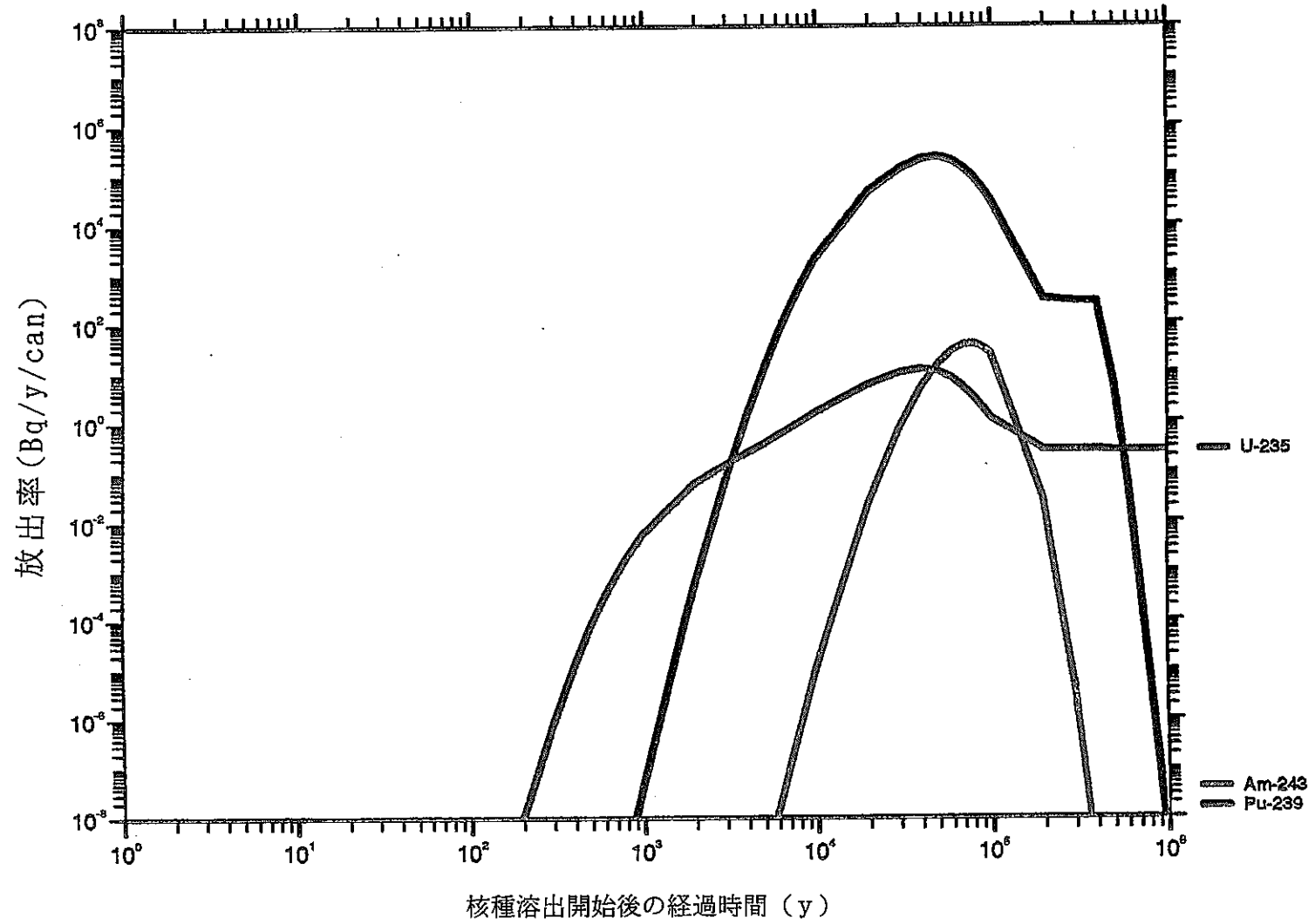


図 3 - 3 緩衝材外側からの核種の放出率の経時変化 (STRENG: ケース a)

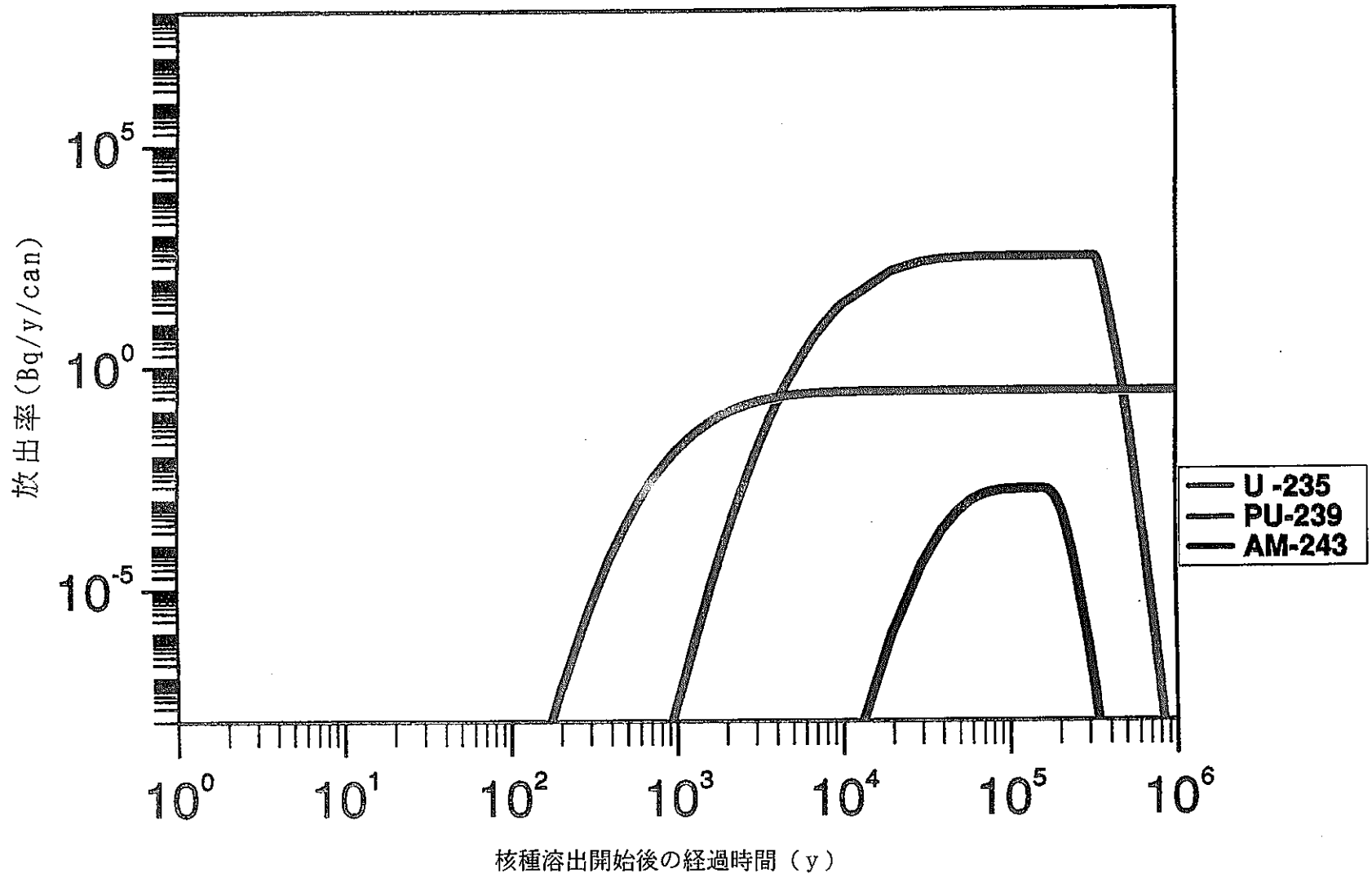


図3-4 緩衝材外側からの核種の放出率の経時変化 (RELEASE: ケースb)

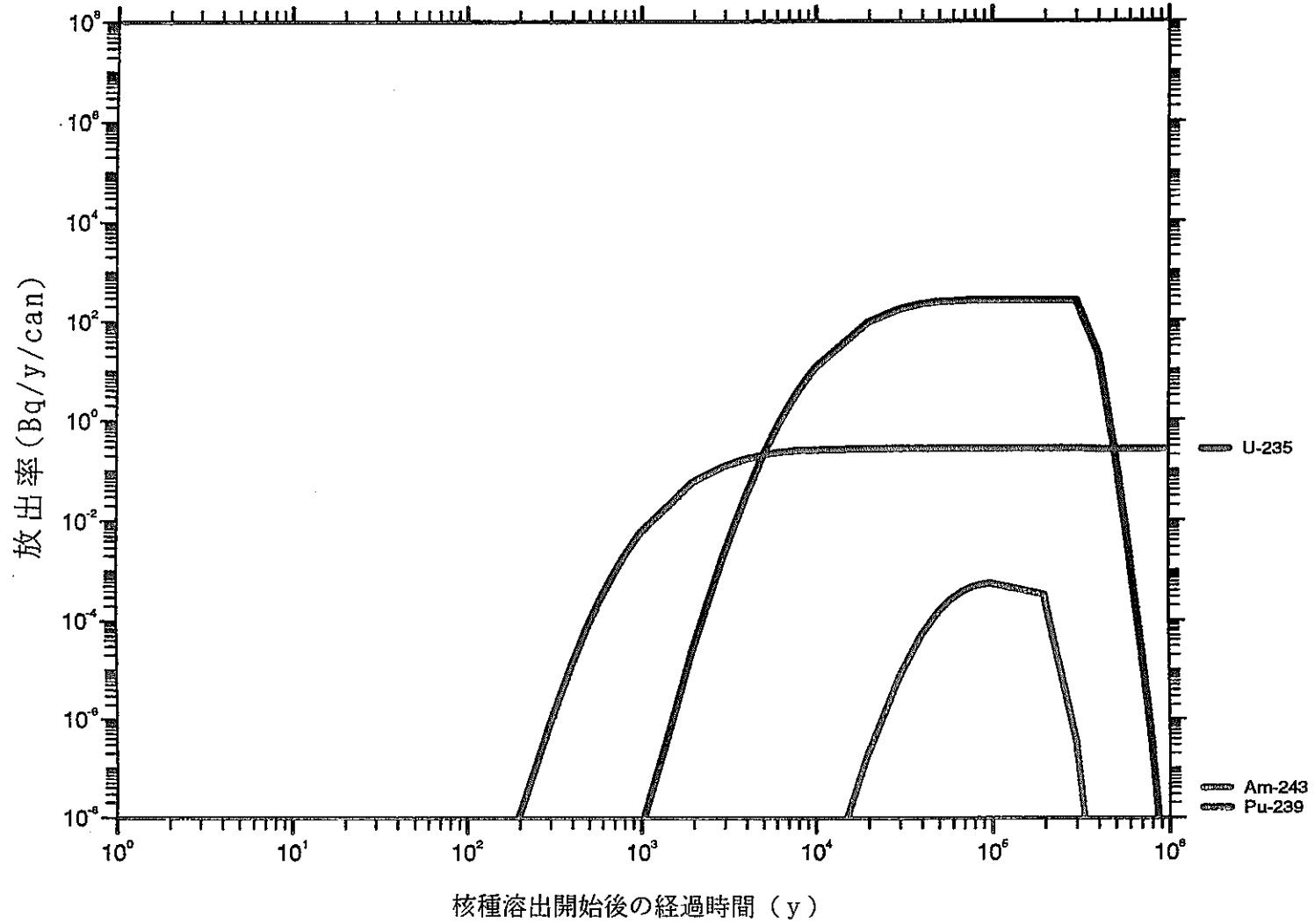


図3-5 緩衝材外側からの核種の放出率の経時変化 (STRENG: ケースb)

緩衝材内側境界での核種フラックスのガラス固化体の表面積への依存性

簡単のためガラス固化体を等価な体積をもつ半径 R_0 の球体におきかえ、ガラス固化体の溶解による体積減少に伴う表面積の変化を以下のように扱う。

微小時間 Δt の間に減少する体積等価球形の半径を ΔR とする。

$$(4/3) \pi \rho [R_0^3 - (R_0 - \Delta R)^3] + 4 \pi R_0^2 \Delta t L \approx 0 \quad (\text{A1-1})$$

ΔR の2次以上の項を微小量として無視すると

$$\begin{aligned} \rho R_0^2 \Delta R &\approx -R_0^2 \Delta t L \\ \Delta R / \Delta t = dR/dt &= -L / \rho \end{aligned} \quad (\text{A1-2})$$

(A1-2) 式を t で積分する。 $t = 0$ で $R = R_0$ から

$$R = -L t / \rho + R_0 \quad (\text{A1-3})$$

単位時間当たりガラス固化体から緩衝材に流入する核種量は

$$J^0_i \times \varepsilon \times S = \frac{4 \pi R^2 \times L}{(4/3) \pi \rho R_0^3} N_i \quad (\text{A1-4})$$

(A1-4) 式に (A1-3) 式を代入して整理すると

$$J^0_i = \frac{3 \times L \times (L \times t - \rho \times R_0)^2}{(\rho \times R_0)^3 \times \varepsilon \times S} N_i$$

が得られる。

ΔX、ΔTの設定方法

RELEASE は有限差分法を用いる数値解コードである。ここでは、解を効率的かつ精度よく求めるための空間メッシュの大きさΔX(m) 及び時間メッシュΔT(y) の設定方法について示す。

1. ΔX、ΔTの関係式の導出

差分法等を利用した数値計算においては、空間、時間メッシュを適切に選ぶことが解を効率よく正確に求めるために重要である。RELEASE を運用する上で、ΔX、ΔTをどのように選ぶかについてその指標となるような情報を得るため、ΔX とΔT の関係を求めることとした。これにあたって用いたのは、緩衝材中の濃度は緩衝材内側境界の濃度を越えることはないという条件である。

図A2-1 に解析領域の分割の概念を示す。ガラス固化体から時間ΔT の間に緩衝材中に放出される核種量R°(kg) は以下のように表される。

$$R^{\circ} = A_B \varepsilon \Delta T J \quad (A2-1)$$

ここで、

A_B : 緩衝材の内側表面積 (m²)

$$A_B = 2 \pi r_i h \quad (A2-2)$$

r_i : ガラス固化体中心から緩衝材内側までの距離 (m)

h : 緩衝材の高さ (m)

ε : 緩衝材の空隙率

ΔT : 時間メッシュ (y)

J : ガラス固化体からの核種フラックス (kg/m²/y)

$$J = -D_p (C^1 - C^0) / (\Delta X / 2) \quad (A2-3)$$

D_p : 緩衝材空隙中の拡散係数 (m²/y)

C^1 : セル1の液相中の核種濃度 (kg/m³)

C^0 : ガラス固化体/緩衝材界面における液相中の核種濃度 (kg/m³)

ΔX : 空間メッシュ(m)

一方、セル1中の核種量 R^1 (g)は

$$R^1 = (\varepsilon + (1 - \varepsilon)Kd \rho) \cdot C^1 \cdot V^1 \quad (A2-4)$$

ここで、

Kd : 緩衝材に対する核種の分配係数 (m³/Kg)

ρ : 緩衝材の密度 (Kg/m³)

V^1 : セル1の体積 (m³)

$$V^1 = \pi h (r_1 + \Delta X)^2 - \pi h r_1^2 = \pi h (2 r_1 \Delta X + \Delta X^2) \quad (A2-5)$$

核種の溶出開始時について考える。

ガラス固化体からセル1に放出される核種量 R^0 は、 $C^1 = 0$ であること及び(A2-2)、(A2-3)から

$$R^0 = 2 \pi r_1 h \varepsilon \Delta T D_p C^0 / (\Delta X/2) \quad (A2-6)$$

緩衝材に放出された核種が ΔT の間にセル2に移行しないと、この R^0 によってセル1の濃度 C^1 を決定すれば、

$$\begin{aligned} & 2 \pi r_1 h \varepsilon \Delta T D_p C^0 / (\Delta X/2) \\ &= (\varepsilon + (1 - \varepsilon)Kd \rho) C^1 V^1 \\ &= (\varepsilon + (1 - \varepsilon)Kd \rho) C^1 \pi h (2 r_1 \Delta X + \Delta X^2) \end{aligned} \quad (A2-7)$$

セル1の濃度 C^1 は緩衝材内側境界濃度 C^0 以下になる必要があることから

$$\frac{2 \pi r_1 H \varepsilon \Delta T D_p / (\Delta X/2)}{(\varepsilon + (1 - \varepsilon)Kd \rho) \pi H (2 r_1 \Delta X + \Delta X^2)} = \frac{C^1}{C^0} \leq 1 \quad (A2-8)$$

実際にはセル1からセル2への核種移行があり、これを考慮した場合には、 C^1 は (A2-7) 式で決定される値より小さいので (A2-8) を満たすように ΔX 、 ΔT を設定すれば最初に述べた条件を満たす。

(A2-8) を ΔX についてまとめると

$$(\Delta X)^3 + 2 r_1 (\Delta X)^2 - (4 r_1 \varepsilon \Delta T D p) / (\varepsilon + (1-\varepsilon) K d \rho) \geq 0 \quad (A2-9)$$

$$A = r_1 \quad (A \geq 0)$$

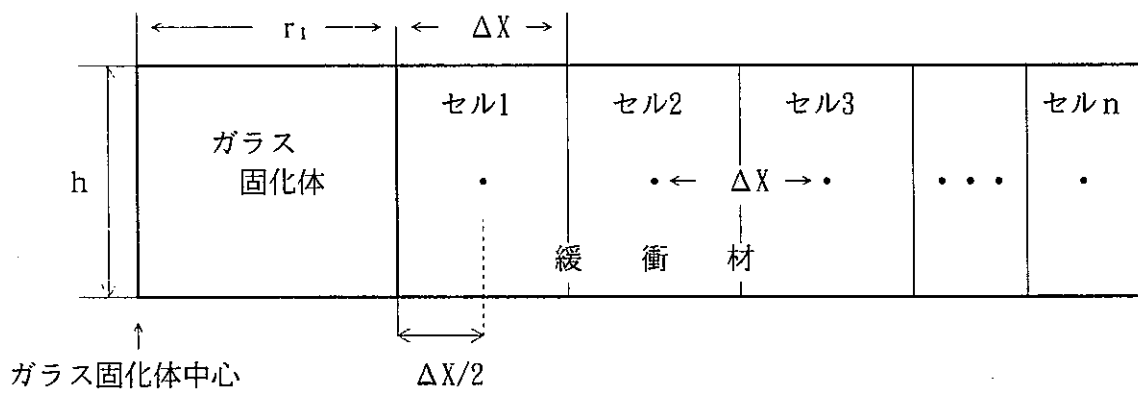
$$B = 4 r_1 \varepsilon \Delta T D p / (\varepsilon + (1-\varepsilon) K d \rho) \quad (B \geq 0)$$

とすると (A2-9) 式は

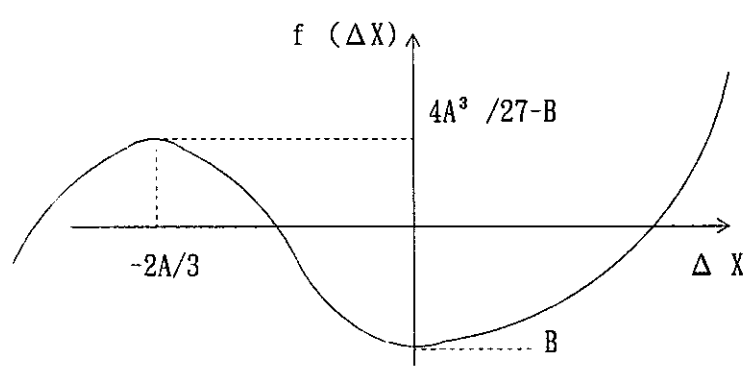
$$f(\Delta X) \equiv (\Delta X)^3 + A (\Delta X)^2 - B \geq 0 \quad (A2-10)$$

となる。3次関数 $f(\Delta X)$ は図A2-2に示すように $\Delta X \geq 0$ においてひとつの解をもち、その解を δX とすると (A2-10) 式を満たす ΔX の範囲は $\delta X \leq \Delta X$ となる。

これが、 ΔX と ΔT を与えるための指標となる関係式である。



図A 2 - 1 緩衝材中のセルの分割の概念



図A 2 - 2 ΔXの解