

ニアフィールド核種移行解析コードRELEASEの改良

— 複数崩壊系列の取扱い —

1994年6月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

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。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 3 3

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 0-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)1994

ニアフィールド核種移行解析コードRELEASEの改良

— 複数崩壊系列の取扱い —

青山 康夫²⁾ 畑中耕一郎¹⁾ 石黒 勝彦¹⁾

要 旨

ニアフィールド核種移行解析コードRELEASEを多数の同位体が存在する複数崩壊系列の取り扱いができるように改良する。

計算対象核種に複数の同位体が存在し沈殿が生じた時、その核種の溶液濃度は元素の溶解度を同位体存在比で分割した濃度とする機能（溶解度分割機能）を追加する。

ニアフィールド核種移行解析コードRELEASEを多数の同位体を含む複数崩壊系列（4系列5核種まで）の計算ができるように改良し、インプットマニュアルを作成した。

また、改良したRELEASEコードをRELEASEと同等の機能を有するMESH NOTEコードと比較計算することにより今回機能追加した溶解度分割機能の妥当性を検証した。

今回の改良により、計算対象核種に複数の同位体が存在し沈殿現象が生じるとき任意の時間・空間で同位体存在比を計算し溶解度分割ができることで、より現実的なニアフィールドの核種移行解析ができるようになった。

1) 環境技術開発部 地層処分開発室

2) コンピュータソフト開発(株)

要 旨

ニアフィールド核種移行解析コードRELEASE*¹を改良し、多数の同位体を含む複数崩壊系列を扱えるように機能拡張した。

本資料は改良したRELEASEコードの内容紹介、及び改良RELEASEコードと同等の機能を持つMESHNOTEコード*²との比較検証結果をまとめたものである。

注) *1 詳細は参考文献(1)参照

*2 " (2)参照

目 次

(Page)

1. はじめに	1
2. 改良RELEASEコード概要	2
2・1. 数学モデル	2
2・2. 初期条件	3
2・3. 境界条件	3
2・3・1. 内側境界条件	3
2・3・2. 外側境界条件	3
2・4. 数値解法	4
2・5. コード改良項目	5
2・5・1. 配列	5
2・5・2. 内側境界濃度	5
2・5・3. 溶解度分割	5
2・6. プログラム フローチャート	7
3. 検証計算	8
3・1. MESHNOTEコードの紹介	8
3・2. 計算条件	9
3・3. 計算結果及び検討	11
4. 今後の課題	16
5. まとめ	18
6. 参考文献	19
添付-A. 改良RELEASEコード 入力マニュアル	20

1. はじめに

RELEASEコード*1は、多孔質媒体中を移流・拡散現象により移行する溶解元素の輸送問題を取り扱う計算コードである。このコードは移流・拡散のほか、吸着及び崩壊連鎖を考慮することができるとともに核種の溶解物質濃度がその元素の溶解度を越えたときに生じる沈澱現象を考慮することができる。

RELEASEは一次元軸対称の有限差分法の計算コードで、解法は移行方程式及びインベントリの質量保存式についてCrank-Nicolsonの陰解法で離散化して解いている。

今回は現存のRELEASEコードの機能拡張として以下の点の改良を行った。

- (1) 現在計算できる核種が単系列（1系列3核種）であるのに対し、多数の同位体を含む複数崩壊系列（4系列5核種まで）が取り扱えるようにする。
- (2) 計算対象核種に同位体が存在し沈澱が生じるとき、緩衝材中のすべての時間・空間で同位体存在比を計算し、そのときの核種の溶液濃度は元素の溶解度を同位体存在比で分割した濃度とする機能（溶解度分割機能）を追加する。

注) *1 詳細は参考文献(1)参照

2. 改良RELEASEコード概要

2.1. 数学モデル

移流・拡散及び吸着・崩壊連鎖を考慮した一次元軸対称の方程式は次式で表される。

$$R_i \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial P_i}{\partial t} = D_p \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) - v \frac{\partial C_i}{\partial r} - R_i \lambda_i C_i + R_{i-1} \lambda_{i-1} C_{i-1} - \lambda_i P_i + \lambda_{i-1} P_{i-1} \quad \dots (2.1)$$

ここで、

$$R_i = 1 + \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} K_{d_i} \rho$$

インベントリの経時変化は

$$\frac{d m_i}{d t} = - \lambda_i m_i + \lambda_{i-1} m_{i-1} - \varepsilon A J_{o_i} \quad \dots (2.2)$$

ここで、

- i : i 番目の核種
- r : 半径方向距離 (m)
- t : 時間 (yr)
- C : 溶液濃度 (g/m³)
- R : 遅延係数 (-)
- K_d : 分配係数 (m³/kg)
- ρ : 密度 (kg/m³)
- D_p : 空隙中の拡散係数 (m²/yr)
- v : 地下水流速 (m/yr)
- λ : 崩壊定数 (1/yr)
- P : 沈澱濃度 (g/m³)
- A : 緩衝材内側表面積 (m²)
- ε : 空隙率 (-)
- m : インベントリ (g)
- J_o : 浸出率 (g/m²/yr)

2・2 初期条件

初期条件を以下のように設定する。

$$C(r, t=0) = C_0$$

C_0 : 初期濃度 (g/m³)

2・3 境界条件

2・3・1 内側境界条件

核種 i の時刻 t におけるインベントリ m_i^t と式 (2.2) で求めた時刻 $t + \Delta t$ におけるインベントリ $m_i^{t+\Delta t}$ の条件により廃棄体と緩衝材との境界である内側境界条件を次式で与える。

(1) $m_i^{t+\Delta t} > 0$ のとき

$$C(r=r_0, t=t+\Delta t) = C^* \times (m_i^{t+\Delta t} / \Sigma m_i^{t+\Delta t})$$

ここで、 C^* : 溶解度 (g/m³)

Σm_i : 核種 i の同位体の総重量 (g)

(2) $m_i^{t+\Delta t} < 0$, $m_i^t > 0$ のとき

次の2式

$$\frac{dm_i}{dt} = -\lambda_i m_i + \lambda_{i-1} m_{i-1} - \varepsilon A J_{0i}$$

$$m_i^{t+\Delta t} = 0$$

を満足する J_{0i} を内側境界とする。

$$J(r=r_0, t=t+\Delta t) = J_{0i}$$

(3) $m_i^{t+\Delta t} = 0$, $m_i^t = 0$ のとき

$$J(r=r_0, t=t+\Delta t) = 0$$

2・3・2 外側境界条件

緩衝材外側と岩盤との境界である外側境界条件として任意の値を規定する。

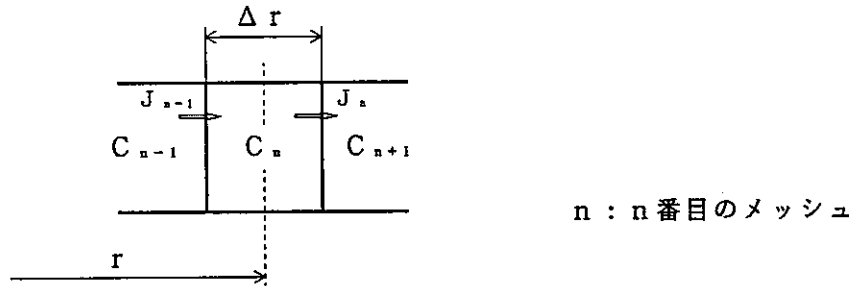
$$C(r=r_1, t) = C_1$$

C_1 : 外側境界濃度 (g/m³)

r_1 : 緩衝材外半径 (m)

2・4. 数値解法

式(2.1) で示した支配方程式は以下のようにCrank-Nicolsonの陰解法で離散化する。



$$\begin{aligned}
 R_i V_n \frac{C_{ni}^{t+\Delta t} - C_{ni}^t}{\Delta t} &= A_{n-1} \frac{J_{n-1i}^{t+\Delta t} + J_{n-1i}^t}{2} - A_n \frac{J_{ni}^{t+\Delta t} + J_{ni}^t}{2} \\
 &+ A_{n-1} v \frac{C_{n-1i}^{t+\Delta t} + C_{n-1i}^t}{2} - A_n v \frac{C_{ni}^{t+\Delta t} + C_{ni}^t}{2} \\
 &- R_{i-1} V_n \lambda_i \frac{C_{ni}^{t+\Delta t} + C_{ni}^t}{2} + R_{i-1} V_n \lambda_{i-1} \frac{C_{n,i-1}^{t+\Delta t} + C_{n,i-1}^t}{2}
 \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (2.3)$$

ここで、

A_n : n 番目のメッシュの外側表面積 (m²)

V_n : " " 体積 (m³)

インベントリの質量保存式(2.2) は次のように離散化する。

$$\frac{m_i^{t+\Delta t} - m_i^t}{\Delta t} = -\lambda_i \frac{m_i^{t+\Delta t} + m_i^t}{2} + \lambda_{i-1} m_{i-1}^{t+\Delta t} - \varepsilon A J_{0i}^{t+\Delta t} \quad \dots\dots\dots (2.4)$$

式 (2.1)の うち沈澱物の計算は Bateman式で解く。

$$P_i^{t+\Delta t} = P_i^t \exp(-\lambda_i \Delta t) + P_{i-1}^t (1 - \exp(-\lambda_{i-1} \Delta t)) \quad \dots\dots\dots (2.5)$$

2・5. コード改良項目

今回のコード改良で変更・追加した箇所を以下に列挙する。

2・5・1. 配 列

単系列（1系列3核種）から複数系列（4系列5核種）の計算ができるように主要パラメータの変数配列を以下のように増加した。

	(改良前)		(改良後)
	1系列3核種		4系列5核種
溶解度	: CPRM(3)		CPRM(4,5)
分配係数	: KD(3)	⇒	KD(4,5)
溶液濃度	: C(3,155)		C(4,5,155)

他の主要変数についても同様の処理を行った。

2・5・2. 内側境界濃度

核種*i*に同位体が存在するとき核種*i*の内側境界濃度は、その元素の溶解度を同位体存在比で分割した溶解度とする。核種*i*の同位体存在比は崩壊・生成と緩衝材への移行により経時変化するため、内側境界濃度も経時変化する。

数式で示すと次のようになる。

$$C(r=0, t) = C^* \times \frac{m_i(t)}{\sum m_i(t)}$$

2・5・3. 溶解度分割

溶解度分割とは『複数の同位体が存在する核種に沈澱現象が生じるとき、その核種の溶液濃度は元素の溶解度を同位体存在比で分割した濃度とする』ことである。

式で示すと以下のようになる。

$$T_i = \varepsilon C_i + (1 - \varepsilon) S_i + P_i$$

$$S_i = K_d \rho C_i$$

ここで、

C_i : 核種 i の溶液濃度 (g/m^3)

S_i : " 吸着濃度 (")

P_i : " 沈澱濃度 (")

T_i : " 総濃度 (")

溶液の濃度が溶解度 C^* に達したときの総濃度を T^* とおくと、

$$T^* = \varepsilon R C^*$$

となる。

沈澱が生じ、溶解度分割を行うのは

$$\Sigma T_i > T^*$$

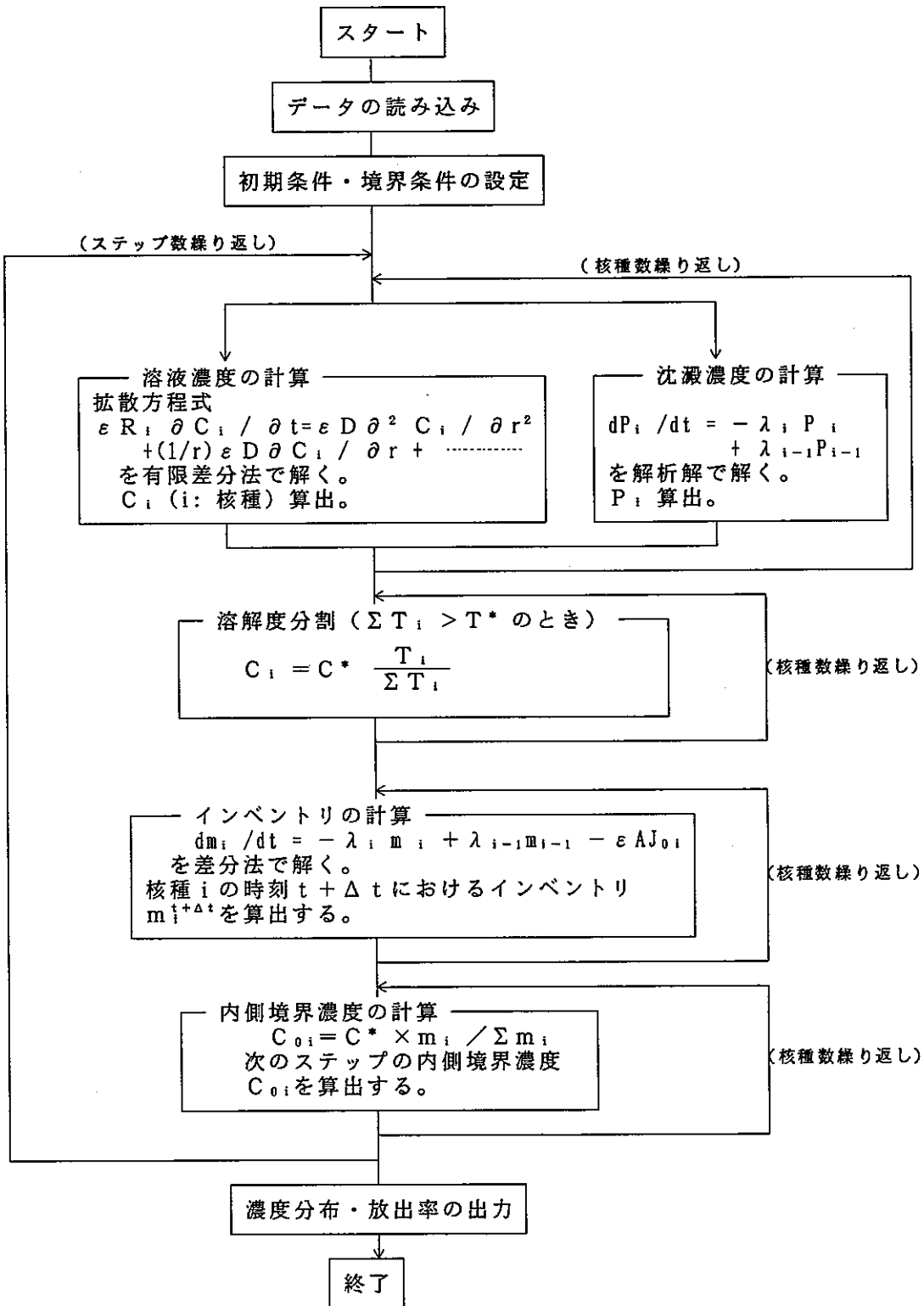
のときで、このとき核種 i の溶液濃度 C_i は

$$C_i = C^* \frac{T_i}{\Sigma T_i}$$

となる。

2・6. プログラム フローチャート

改良RELEASEコードのプログラム処理の流れを以下に簡単に示す。



3. 検 証 計 算

今回改良したRELEASEコードの検証をするため、RELEASEコードと同等の機能を所有するMESHNOTEコード*2と複数崩壊系列の比較計算を行い、溶解度分割機能の妥当性を検討した。

3・1. MESHNOTEコードの紹介

MESHNOTEコードは一次元軸対称モデルのニアフィールド核種移行解析コードである。ここで、このコードの特徴及び支配方程式について簡単に紹介する。

(1) 特 徴

MESHNOTEコードの特徴を以下に列挙する。

- ・一次元軸対称モデルである。
- ・有限差分法の計算コードである。
- ・拡散、沈澱現象を扱える。
- ・非線型吸着を扱える。
- ・複数崩壊系列の計算が可能である。
- ・内側境界は溶解度、外側境界はミキシングセルのみ考慮できる。
- ・溶解度分割機能を持つ。
- ・ Δt の自動設定機能を有する。
- ・数値解法がRELEASEコードと若干異なる。

(2) 支配方程式

$$\frac{\partial T_i}{\partial t} = \varepsilon D_p \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) - \lambda_i T_i + \lambda_{i-1} T_{i-1}$$

$$T = \varepsilon C_i + (1 - \varepsilon) S_i + P_i$$

ここで、 T_i : 核種 i の総濃度 (g/m^3)

C_i : " 溶液濃度 (")

注) *2 詳細は参考文献(2)参照

- S_i : 核種 i の吸着濃度 (g/m^3)
 P_i : " 沈澱濃度 (")
 ϵ : 空隙率 (-)
 D_F : 空隙中の拡散係数 (m^2/yr)
 λ : 減衰定数 ($1/yr$)

3・2. 計算条件

(1) 計算目的

以下の複数崩壊系列の計算を行い、改良RELEASEコードとMESHNOTEコードで緩衝材外側での放出率を比較する。特に多数の同位体が存在するウランに注目して、沈澱が生じ溶解度分割を行うときの放出挙動を比較検討する。

系列1 : Am-243 → Pu-239 → U-235 → Pa-231

系列2 : Pu-242 → U-238 → U-234 → Th-230 → Ra-226

系列3 : Am-241 → Np-237 → U-233 → Th-229

系列4 : Pu-240 → U-236 → Th-232

(2) 計算モデル

計算モデル及び境界条件を図3-1に示す。

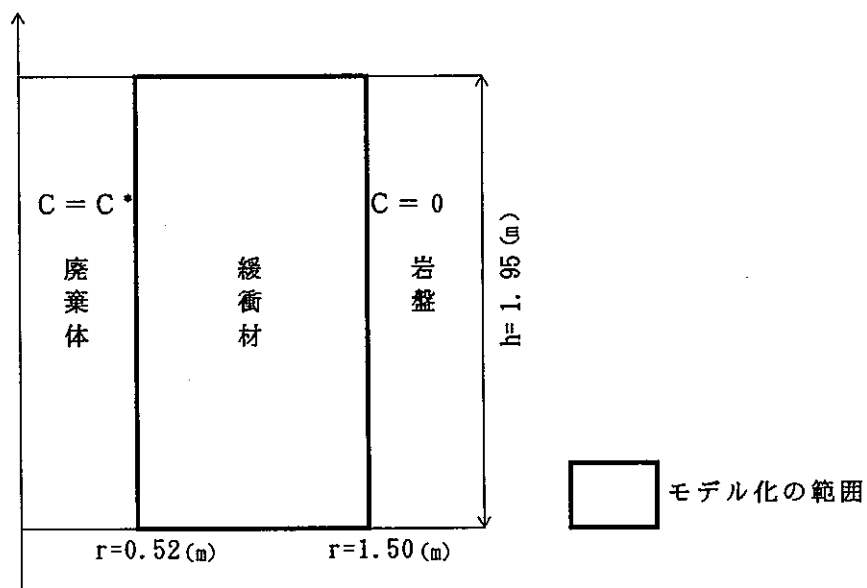


図3-1. 検証計算モデル

(3) 入力パラメータ

検証計算で使用了核種の入力パラメータを表3-1に示す。

表3-1. 核種のパラメータ

核種	半減期 (yr)	インベントリ (mol)	溶解度 (mol/m ³)	分配係数 (m ³ /kg)
Am-243	7.95×10^3	8.710×10^3	1.10×10^{-3}	0.27
Am-241	4.32×10^2	5.738×10^3		
Pu-242	3.79×10^5	3.660	1.00×10^{-9}	0.44
Pu-240	6.58×10^3	3.521×10^1		
Pu-239	2.44×10^4	6.623×10^1		
Np-237	2.14×10^6	6.199×10^2	2.07×10^{-9}	2.00×10^{-3}
U-238	4.51×10^9	1.938×10^3	7.22×10^{-7}	9.00×10^{-4}
U-236	2.39×10^7	8.787		
U-235	7.10×10^8	1.937×10^1		
U-234	2.47×10^5	3.264×10^{-1}		
U-233	1.62×10^5	6.055×10^{-3}		
Th-232	1.40×10^{10}	9.294×10^{-4}	2.40×10^{-7}	2.00×10^{-3}
Th-230	8.00×10^4	6.877×10^{-5}		
Th-229	7.34×10^3	8.244×10^{-7}		
Pa-231	3.24×10^4	8.452×10^{-5}	1.27×10^{-6}	1.00×10^{-3}
Ra-226	1.60×10^3	1.700×10^{-8}	1.32×10^{-2}	1.00

その他のパラメータを以下に示す。

$$D_p = 3.1536 \times 10^{-4} \quad (\text{m}^2/\text{y})$$

$$\varepsilon = 0.34 \quad (-)$$

$$\rho = 2700.0 \quad (\text{kg}/\text{m}^3)$$

3 - 3. 計算結果及び検討

図3-2にRELEASEの計算結果（放出率）を示す。

図3-3にMESHNOTEの計算結果（放出率）を示す。

図3-4にRELEASE, MESHNOTEそれぞれウランの放出率を比較した結果を示す。

図3-5に溶解度分割する場合としない場合のU-238の放出率を比較した結果を示す。

図3-2、図3-3を比較すると、RELEASE, MESHNOTEともに同等の計算結果が得られたことがわかる。

図3-4は図3-2（RELEASEの計算結果）と図3-3（MESHNOTEの計算結果）からそれぞれ多数の同位体が存在するウラン（U-238, U-236, U-235, U-234, U-233）の放出率のみ抽出したもので、実線がRELEASE、点線がMESHNOTEの計算結果を表す。

参考のため、図3-5に複数崩壊系列で溶解度分割する場合のU-238の放出率と単核種として扱い溶解度分割しない場合のU-238の放出率を示す。実線が複数崩壊系列、点線がU-238単独の計算結果である。

図3-5より複数崩壊系列の場合は3000年以降でU-238に比べU-235の存在量が大幅に増え、沈澱が生じ溶解度分割の効果が表れていることがわかる。

図3-4に示すように、今回改良したRELEASEの計算結果がMESHNOTEの計算結果と良く合っていることから、今回改良したRELEASEコードの妥当性が確認できた。

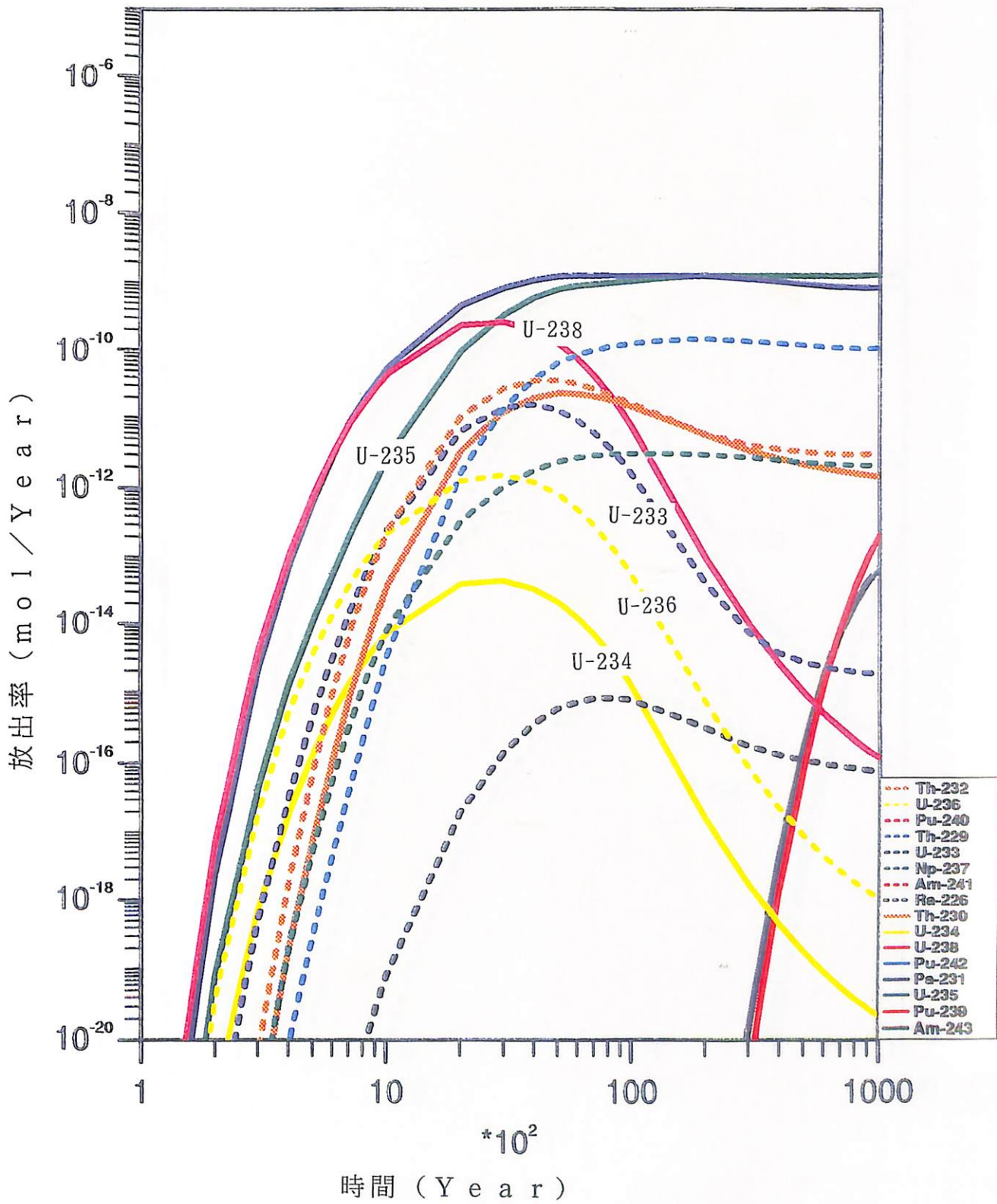


図3-2. RELEASE 計算結果 (放出率)

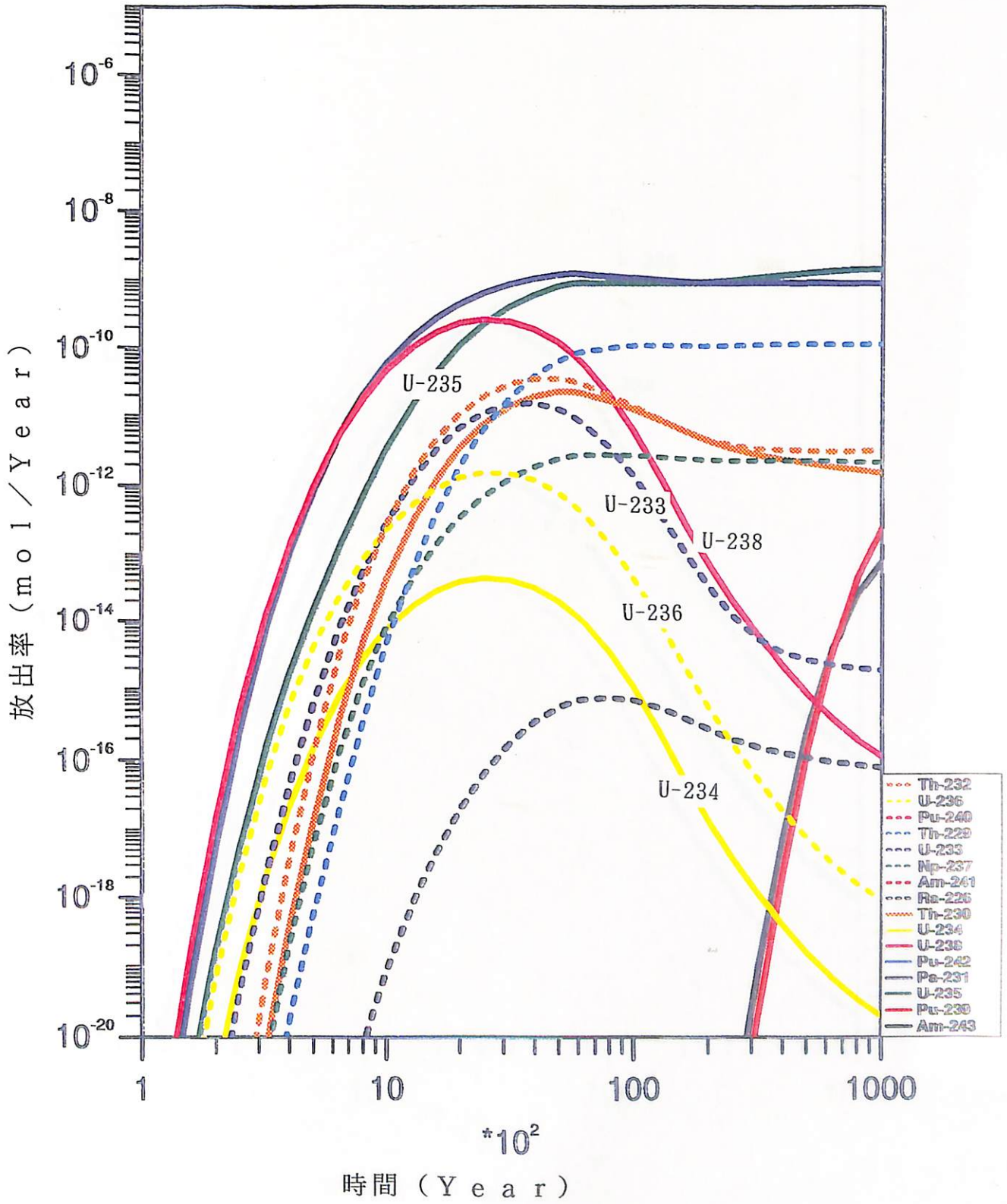


図3-3. MESHNOTE 計算結果 (放出率)

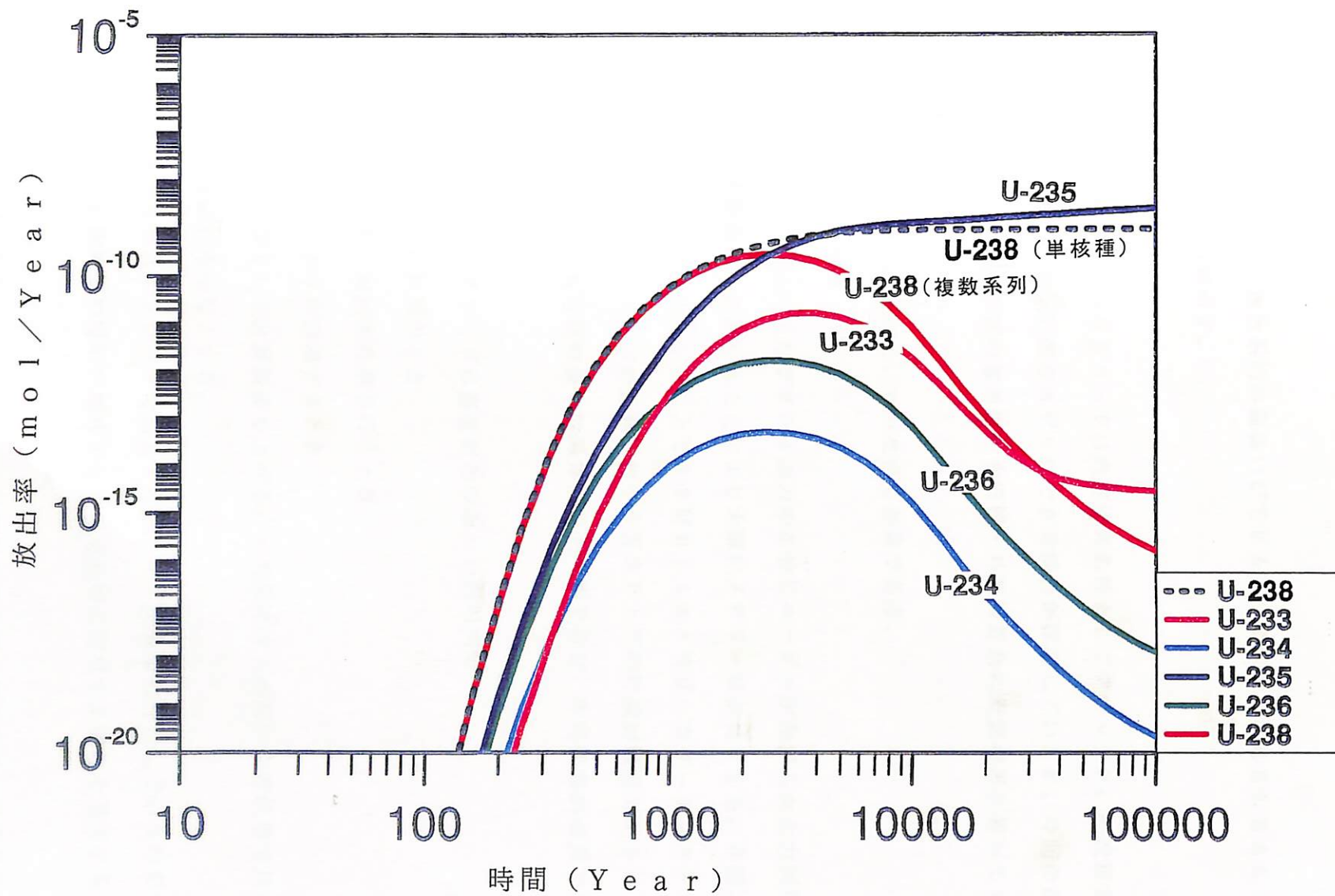


図3-5. 溶解度分割する場合としない場合のU-238の放出率の比較

4. 今後の課題

今後の課題として、複数系列の取扱いができるように改良したRELEASEコードの現状の問題点を以下に示す。

① 境界条件

改良前のRELEASEコードは内側境界条件としてフラックス、一次反応モデル、外側境界条件としては岩盤をモデル化できる機能が存在していたが、今回の改良ではメモリーの節約・改良作業の容易性から内側・外側境界共に規定境界に絞ってコード改良を行った。

今後、他の境界条件についての改良も必要である。

② プログラムの制限

RELEASEコードはプリント出力のためにユーザーが指定した出力間隔で濃度分布を内部記憶装置に格納することにより大幅にメモリーを必要とする。今回、複数崩壊系列を扱えるように改良したことで32Mbyteメモリーのワークステーションで、改良RELEASEコードの計算は約10万ステップの計算が限度である。

10^8 年など継続時間の長い計算は現状不可能であり、今後改良が必要である。

③ Δt の自動設定

MESHNOTEコードは濃度変化の激しい次の状態

- ・初期非定常状態のとき
- ・沈澱が生じ溶解度分割を行うとき
- ・インベントリが枯渇するとき

には Δt を小さくして計算精度を上げる。一方濃度変化のない定常状態では Δt を大きくして計算時間を少なくする。

現状RELEASEコードでは Δt をユーザーが適当に設定しているのが現状で、解の信頼性、計算時間の短縮の観点で Δt を自動的に設定する機能を追加すると便利である。

参考のため、RELEASEとMESHNOTEで、第3章の4系列合計16核種の検証計算で要した計算時間(CPUタイム)を以下に示す。計算機種はIBM RS-

6000である。

RELEASE ($\Delta t = 1$ 年、10万ステップ) 2451.30 (s)

MESHNOTE 99.19 (s)

5. ま と め

今回の改良によりRELEASEコードは複数崩壊系列（4系列5核種まで）の計算が可能となった。そして、多数の同位体が存在し、その同位体の溶液濃度の合計が元素の溶解度を超えるとき、緩衝材中の任意の時間・空間で同位体存在比を計算し、溶解度をその求めた同位体存在比で分割する機能を追加した。この改良により計算対象核種に同位体が存在するとき、より現実的な核種移行解析が可能となった。

また、改良したRELEASEコードをRELEASEと同等の機能を有するMESHNOTEコードと比較計算することにより、改良コードの妥当性を検証した。

今後の課題として以下のことが必要と考えられる。

- ・ Dirichlet 境界以外の境界条件を扱えるようにする。
- ・ 継続時間の長い（ステップ数の多い）計算ができるようにメモリーの効率化を行う。
- ・ 計算時間短縮、解の信頼性向上のためにMESHNOTEコードの所有する Δt の自動設定機能を追加する。

6. 参 考 文 献

- (1) ニアフィールド核種移行評価コードRELEASE (PNC TN 1410 92-060)
- (2) 地下水シナリオに対する核種移行モデルの詳細化 (PNC ZJ 1281 92-002)

添 付 - A

改良RELEASEコード入力マニュアル

FORMAT

- ①

kei

kei : 系列数

(*)
- ②

nn(k), k=1, kei

nn(k) : 核種数

(*)
- ③

ztit(k, m), m=1, nn(k)
⋮

ztit(k, m) : 核種名

(5A7)

} k=1, kei
- ④

cwf(k, m), m=1, nn(k)
⋮

cwf(k, m) : 固化体の重量分率 (-)

(*)

} k=1, kei
- ⑤

cprm(k, m), m=1, nn(k)
⋮

cprm(k, m) : 元素の溶解度 (g/m³)

(*)

} k=1, kei
- ⑥

port(k, m), m=1, nn(k)
⋮

port(k, m) : 核種の同位体比 (-)

(*)

} k=1, kei
- ⑦

thalf(k, m), m=1, nn(k)
⋮

thalf(k, m) : 核種の半減期 (yr)

(*)

} k=1, kei
- ⑧

db(k, m), m=1, nn(k)
⋮

db(k, m) : 核種の空隙中拡散係数 (m²/yr)

(*)

} k=1, kei

⑨	kd(k, m), m=1, nn(k)	}	k=1, kei	(*)
	⋮			

kd(k, m) : 核種の遅延係数 (m³/ kg)

⑩	wg	(*)
---	----	-----

wg : 固化体の重量 (kg)

⑪	vb	epsb	rhob	(*)
---	----	------	------	-----

vb : ダルシー流速 (m/yr)
 epsb : 空隙率 (-)
 rhob : 密度 (kg/ m³)

⑫	lengb	areab	nb	(*)
---	-------	-------	----	-----

lengb : 緩衝材厚さ (m)
 areab : 固化体側面積 (m²)
 nb : 分割数

⑬	btime	ctime1	ctime2	etime	(*)
---	-------	--------	--------	-------	-----

btime : 核種浸出開始時刻 (yr)
 ctime1 : 最初の Δ t に対する終了時刻 (yr)
 ctime2 : 2 番目の Δ t に対する終了時刻 (yr)
 etime : 計算終了時刻 (yr)

⑭	delt1	delt2	delt3	(*)
---	-------	-------	-------	-----

delt1 : 最初の Δ t (yr)
 delt2 : 2 番目の Δ t (yr)
 delt3 : 3 番目の Δ t (yr)

⑮	iref1	iref2	iref3	iwt	(*)
---	-------	-------	-------	-----	-----

プリント出力間隔

(iref1) × (iwt) : 初期 (btime ~ ctime1) の出力間隔
 (iref2) × (iwt) : 2 番目 (ctime1 ~ ctime2) の出力間隔
 (iref3) × (iwt) : 3 番目 (ctime2 ~ etime) の出力間隔

⑯	xsc11(1)	xsc11(2)	(*)
---	----------	----------	-----

xsc11(1) : 固化体中心から緩衝材内側までの距離 (m)
 xsc11(2) : " " 外側 " (m)

⑰	m4	(*)
---	----	-----

m4 : 複数固化体を考慮する (= 1)
 " " しない (= 0)

⑱ ncan (*)

ncan : 固化体数

⑲ m5 (*)

m5 : 沈澱を考慮する (= 1)
" しない (= 0)

⑳ portm(k, m), m=1, nn(k) (*)
⋮ } k=1, kei

portm(k, m) : 初期同位体存在比 (-)

㉑ ico(k, m), m=1, nn(k) (*)
⋮ } k=1, kei

ico(k, m) : 初期濃度 (g/m³)

㉒ coo(k, m), m=1, nn(k) (*)
⋮ } k=1, kei

coo(k, m) : 外側境界濃度 (g/m³)

㉓ iprnum (*)

iprnum : プリントアウトする元素の数

㉔ pelem(i), i=1, iprnum (10A7)

pelem(i) : 元素名

㉕ iplnum (*)

iplnum : 濃度プロファイル出力時間の数

㉖ ptime(i), i=1, iplnum (*)

ptime(i) : 濃度プロファイル出力時間 (yr)