



U.S. DEPARTMENT OF
ENERGY

PNNL-22347

Prepared for the U.S. Department of Energy
under Contract DE-AC05-76RL01830

Task 3: PNNL Visit by JAEA Researchers to Participate in TODAM Code Applications to Fukushima Rivers and to Evaluate the Feasibility of Adaptation of FLESCOT Code to Simulate Radionuclide Transport in the Pacific Ocean Coastal Water Around Fukushima

Y Onishi

March 2013



Pacific Northwest
NATIONAL LABORATORY

*Proudly Operated by **Battelle** Since 1965*

DISCLAIMER

This report was prepared as an account of work sponsored by an agency of the United States Government. Neither the United States Government nor any agency thereof, nor Battelle Memorial Institute, nor any of their employees, makes **any warranty, express or implied, or assumes any legal liability or responsibility for the accuracy, completeness, or usefulness of any information, apparatus, product, or process disclosed, or represents that its use would not infringe privately owned rights.** Reference herein to any specific commercial product, process, or service by trade name, trademark, manufacturer, or otherwise does not necessarily constitute or imply its endorsement, recommendation, or favoring by the United States Government or any agency thereof, or Battelle Memorial Institute. The views and opinions of authors expressed herein do not necessarily state or reflect those of the United States Government or any agency thereof.

PACIFIC NORTHWEST NATIONAL LABORATORY

operated by

BATTELLE

for the

UNITED STATES DEPARTMENT OF ENERGY

under Contract DE-AC05-76RL01830

Printed in the United States of America

Available to DOE and DOE contractors from the
Office of Scientific and Technical Information,
P.O. Box 62, Oak Ridge, TN 37831-0062;
ph: (865) 576-8401
fax: (865) 576-5728
email: reports@adonis.osti.gov

Available to the public from the National Technical Information Service,
U.S. Department of Commerce, 5285 Port Royal Rd., Springfield, VA 22161
ph: (800) 553-6847
fax: (703) 605-6900
email: orders@ntis.fedworld.gov
online ordering: <http://www.ntis.gov/ordering.htm>



This document was printed on recycled paper.

(9/2003)

**Task 3: PNNL Visit by JAEA
Researchers to Participate in
TODAM Code Applications to
Fukushima Rivers and to Evaluate
the Feasibility of Adaptation of
FLESCOT Code to Simulate
Radionuclide Transport in the
Pacific Ocean Coastal Water
Around Fukushima**

Y Onishi

March 2013

Prepared for
the Japan Atomic Energy Agency
under Contract 61537

Pacific Northwest National Laboratory
Richland, Washington 99352

概要

原子力機構（JAEA）の研究者 4 名が米国エネルギー省のパシフィックノースウエスト国立研究（PNNL）を訪問した。JAEA との打ち合わせを通して、PNNL は JAEA に福島原発事故で放出された放射性セシウム（¹³⁷Cs）の環境動態予測に使用予定の PNNL が開発したシミュレーションコード TODAM、FLESCOT 等の情報を提供し、今後の PNNL-JAEA 共同作業・研究について具体的内容が整理され、目標・方向性が明確になった。また、JAEA はこの訪問で世界最大規模で行われているエネルギー省のハンフォード・サイトの環境浄化作業等の見学を行い、福島原発の環境汚染の評価及び浄化に資する為、放射性物質の除染方法等についての情報収集を行った。

PNNL の各種解析コードの開発者、解析担当者が JAEA と直接議論することにより、研究開発の背後に隠れたポイント、計算効率化・収束性のための工夫など、直接顔をあわせて話し合わなければ伝えられなかった知見・情報を JAEA に提供できた。加えて、現段階での研究開発の限界や改善すべきポイント等、今後共同で作業・研究を進めるための助言を与えたことも JAEA に重要な収穫であったと思われる。そして、現実の環境や物理現象に密着した各種モデルの表現法、実験で決められないパラメータの代替決定法についても JAEA に知見を提供した。いずれも福島原発の調査・研究に直結する重要なポイントであり、JAEA の今後の作業に適宜反映出来るとおもわれる。

環境中での放射性物質動態研究に関連する解析手法について PNNL の専門家と JAEA の解析担当者との打ち合わせを行い、福島原発の環境動態研究で必要と考えられる研究開発手法の全体像を JAEA に表示した。特に 1 次元河川シミュレーションコード TODAM (Time-Dependent, One-dimensional Degradation And Migration code)、3 次元河川・河口・沿岸域シミュレーションコード FLESCOT (Flow, Energy, Salinity, Sediment and Contaminant Transport Code) 及びそのベースである 3 次元流体シミュレーションコード TEMPEST (Transient Energy Momentum Pressure Equation Solution in Three-dimensions) については計算原理及び実施例、並びに具体的計算方法を詳細に説明した。今後福島原発の環境動態解析・評価を進めるための大きな指針として役立つ為、PNNL の研究開発の背後の隠れた工夫、限界等についても情報を提供した。

さらに今後の共同研究内容を整理する為、分子原子シミュレーションの研究者やスーパーコンピュータの専門家とセシウム（¹³⁷Cs）の新たな分子挙動計算法、計算コードの並列化等について議論した。加えて、並列化された流体シミュレーションコード ParaFlow、河川流域（Watershed）シミュレーションコード DHSVM-HEM、環境モニタリング、環境除染作業、使用済み燃料貯蔵キャスクシミュレーションの説明も行った。

サイト・ツアーとして、ハンフォード・サイト、PNNL の環境分子科学研究所 (Environmental Molecular Science Laboratory)、放射化学処理研究所 (Radiological Process Laboratory) と生命科学研究所 (Facility 331) の見学を通して、PNNL が進めている土壌汚染の評価及び除染・浄化に関する作業内容・研究内容及び環境回復に関する最先端の研究開発動向を JAEA に提示した。

下記に示すように、今後の方針として、TODAM、FLESCOT に加え、PNNL が開発した FETRA (2 次元河川・河口・沿岸域シミュレーションコード)、河川流域モデル、コードの並列化、分子原子レベルシミュレーションについても PNNL と共同で検討・研究を進めていくことで PNNL と JAEA は同意した。

- 1次元河川シミュレーション (TODAM) : 福島のいくつかの河川の情報をインプット・データとして計算を進めていく。CHARIMA コードに福島の実環境パラメータを入力する必要があり、必要情報を整理後 CHARIMA コードで川の流速の計算を行う。USLE に基づく土壌流亡の計算結果を TODAM のインプット・データとした計算も行う。
- 2次元河川・河口・沿岸域シミュレーション (FETRA) : FETRA は JAEA 東海の再処理工場の海岸線付近での波浪 (wave breaking to littoral transport) の影響も入れて堆積物輸送のシミュレーションを行った実績を持つシミュレーションコードである。iRIC (有限差分法) を用いた2次元河川シミュレーションを JAEA で進め、その結果を FETRA (有限要素法) に入れ別途堆積物輸送を計算できるかの検討を進める。オープンコードの2次元有限要素法、RMA-2 コードと FETRA を組み合わせたバージョンでの計算についても検討を進める。チェルノブイリの環境除染評価で RMA-2 と FETRA は過去に組み合わせた経験もある。
- 3次元河口・沿岸域シミュレーション (FLESCOT) : JAEA は既に導入している3次元流体計算コード ROMS で試計算を進めるとともに、FLESCOT についても理解を深めながら3次元河口・沿岸域の計算に用いるコードの選定を行っていくこととした(波浪のデータを取り入れた FLESCOT あるいは別の流体コードによる土砂移動計算の検討)。JAEA は別途沿岸の波浪を再現するための地形データとコードを入手し、計算を進める。2013年度前半、JAEA 研究者が PNNL に滞在し FLESCOT コードを実際に動かすことも検討し、他のコードとの比較を行い年度後半ごろに選定する。
- Watershed モデルによる土壌流亡計算 : PNNL の研究者が開発した Watershed モデル : DHSVM/HEM の福島環境への適用について JAEA は検討を進める。
- 並列化・可視化 : JAEA は3次元河口・沿岸域の計算について、ROMS 等のコードの大規模化(数万プロセッサ使用)に並列化が可能かどうかの調査を行い、その後 FLESCOT の機能を組み込むことができるかの検討を進める。なお並列化については5年後の計算機能力を見越しても利用できるものとなるよう検討を進める。JAEA は又 Global Array Toolkits の有効性を原子力機構のスーパーコンピュータ等で調査する。JAEA は可視化については PNNL が開発した PHOENIX の機能等を参考に検討を進める。
- 原子分子レベルシミュレーション : JAEA で進めている調査研究を強化する研究項目として、PNNL は下記の共同研究項目の提案をし、JAEA はその検討及び研究を進める :
 - モデルの改良による、JAEA の計算の高精度化
 - セシウムと競合する海水中のイオン、溶媒を含む、より現実的なモデルの構築と解析
 - PNNL/EMSL で開発された、新しい自由エネルギー評価法、分子動力学法、QM/MM (量子力学計算と分子動力学計算の組合せ) 法及び AIMD/MM (第一原理分子動力学計算と分子動力学計算の組合せ) 法などの適用によるシミュレーションのスケールアップ。

なお、土壌サンプルを用いた粘土鉱物への Cs の吸脱着機構の解明については、PNNL の生命科学研究施設で実験態勢が整っていることから、現在 JAEA で進めている土壌等の調査結果がある程度纏まった段階で、JAEA は PNNL と共同作業内容について議論を深めることとした。微視的スケールと巨視的スケールの接合方法についても将来検討する。

Michael Kluse PNNL 所長と Jud Verdin 副所長は JAEA 研究者4名との面会時、福島原発事故対策につき PNNL の協力を約束した。

Contents

1.0 前書き	1
2.0. 非定常、1次元、河川シミュレーションコードTODAM	6
3.0. 非定常、2次元の FETRA コード	9
4.0 非定常、3次元の FLESCOT コード	12
4.1. TEMPEST コード	12
4.2. Chemically Reactive Fluid Dynamic Transport Model, ARIAL コード	16
4.3. FLESCOT コード	19
5.0. シミュレーションコードの並立化と可視化	28
6.0. セシウム粘土鉱物との吸着と脱着	32
6.1. 巨視的観点	32
6.2. 微視的観点	33
7.0. 河川流域 (Watershed) DHSVM と HEM コード	35
8.0. ハンプフォードサイトの環境評価と除染	37
8.1. ハンプフォードサイトの汚染と除染	37
8.2. ハンプフォードサイトのモニタリング	38
9.0. ハンプフォードサイトの環境除染	39
10.0 使用済み燃料貯蔵・運送・処分キャスク評価	40
11. サイトと PNNL の施設見学	42
11.1. ハンプフォード・サイト	42
11.2. 環境分子科学研究所 (EMSL: Environmental Molecular Science Laboratory)	43
11.3. 放射化学処理研究所 (RPL: Radiochemical Processing Laboratory)	43
11.4. 生命科学研究所施設 (Life Sciences Laboratory Building 331)	43
12.0. 主な PNNL 研究者参加メンバーによる解説、会談	44
13.0. 結論と今後の JAEA と PNNL の協力	46
13.1. 総括	46
13.2. 今後の JAEA と PNNL の研究協力	46
14.0 References	48

Figures

1. 1次元 TODAM の適応例：チェルノブイリ事故で汚染されたプルピェット川とドニエプル川の ⁹⁰ Sr のモデル予測値と実測値の比較.....	1
2. 3次元 FLESCOT の適応例：ハドソン川河口付近での河川底に蓄積した ¹³⁷ Cs のモデル予測値と実測値の比較.....	1
2. クリンチ川の土壌蓄積予測と実測値.....	7
3. テネシー川の土壌蓄積予測と実測値.....	7
4. FETRA によるプリピャット川の洪水地域の ⁹⁰ Sr の除染モデル評価.....	10
5. FETRA による James 川で Kepone 濃度分布と実測値の比較.....	11
6. FETRA による James 川除染効果予測.....	11
7. 3次元 Round jet.....	14
8. Diablo Canyon 原発から放出された温排水.....	14
9. West Valley Three-Electrode Melter with Sloping Sides.....	15
10. ハンプフォード Melter.....	15
11. ハンプフォードの廃棄物混合.....	16
12. ハンプフォード貯蔵タンク内の放射性廃棄物の化学変化の予想と実測値.....	17
13. ハンプフォード貯蔵タンク内の放射性廃棄物に水を加えた場合の化学変化の予想と実測値.....	18
14. ARIEL の化学変化を起こす放射性物質の水との混合と化学変化のシミュレーション.....	18
15. ハドソン川とインディアン原発.....	22
16. ¹³⁷ Cs の吸着能力.....	22
17. FLESCOT による水中の ¹³⁷ Cs の予測と実測値.....	23
18. FLESCOT による河床での ¹³⁷ Cs の予測と実測値.....	23
19. バザーズ湾とニューベッド港とロブスターの汚染過程.....	24
19. 土壌と汚染物濃度の FLESCOT の予測と測定値.....	24
20. 水深2800メートルと3800メートルの低レベル放射性物質の海洋投棄サイト.....	25
21. FLESCOT による水溶性と吸着された放射性物質の水中濃度予想.....	25
22. FLESCOT に土壌に吸着された放射性物質の海底濃度予想.....	26
23. PNNL 環境分子科学研究所の Chinook Supercomputer.....	28
24. ParaFlow 流体コードの並列化の有効性.....	29
25. ParaFlow による貯蔵タンク内でのポンプによる廃棄物混合.....	30
26. eSTOMP の並列化の様構成テスト.....	30
27. ハンプフォードの subsurface の流れのシミュレーション.....	31
28. セシウムの土壌への吸着サイト.....	32
29. Molecular Dynamics Simulation of Sodium Montmorillonite.....	33
30. Scale-up の為の Multiscale Simulation Approach.....	34
31. Distributed Soil Hydrology Vegetation Model の Representation.....	35
32. DHSVM と HEM による Yakima Training Center 内での土壌浸食量.....	36
33. ワシントン州東部にあるエネルギー省のハンプフォードサイト.....	37
34. ハンプフォードサイトの環境除染戦略.....	37

35.	ハンフォードサイトの地下水汚染源	38
36.	ハンフォードサイトの地下水モニタリング	38
37.	ハンフォードの汚染土壌の除去	39
38.	Apatite による地下水中の ^{90}Sr の除去	39
39.	核燃料の落下による損傷のシミュレーション	40
40.	核燃料の Retrieval and Lifting Analysis	41
41.	Horizontal Dry Storage System の熱分布のシミュレーション	41

Table

1	JAEA の PNN 訪問時の agenda	2
---	------------------------------	---

1.0 前書き

河川と福島県沿岸に放出されたセシウムは水流により主に水中に浮遊した土壌によって移行する (Onishi et al. 2007a)。そのあるものは河川底や海底に蓄積する。これらによって、農業用水、飲料水が汚染され、魚、えび、海藻などが汚染される。それゆえ、環境評価をするにはセシウムの土壌との吸着・脱着機構及び水溶性と土壌に吸着したセシウムが環境中にどう移行するかを評価する必要がある。PNNL はそれらの移行を予測する非定常1次元、非定常2次元、非定常3次元シュミレーションコード、Time-Dependent, One-dimensional Degradation and Migration Code, TODAM (Onishi et al. 2007a); Finite Element Transport Code, FETRA (Onishi 1994, 2007b); Flow, Energy, Salinity, Sediment and Contaminant Transport Code, FLESCOT (Onishi et al. 1992, 1993) 等を開発し、さまざまな河川、沿岸、海洋に適応されている。図1に TODAM の適応例としてチェルノブイリ事故で汚染されたプルピェット川とドニエプル川の ^{90}Sr のモデル予測と実測値の比較を示している。図2は FLESCOT に適応例としてニューヨーク湾に注ぐ付近の潮の満ち引き等で影響されるハドソン川の ^{137}Cs の予測と実測の比較を示す。

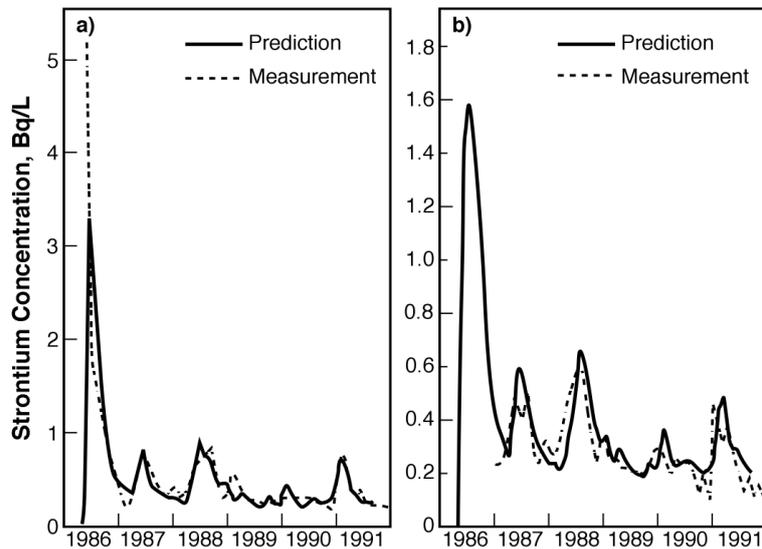


図1. 1次元 TODAM の適応例：チェルノブイリ事故で汚染されたプルピェット川とドニエプル川の ^{90}Sr のモデル予測値と実測値の比較

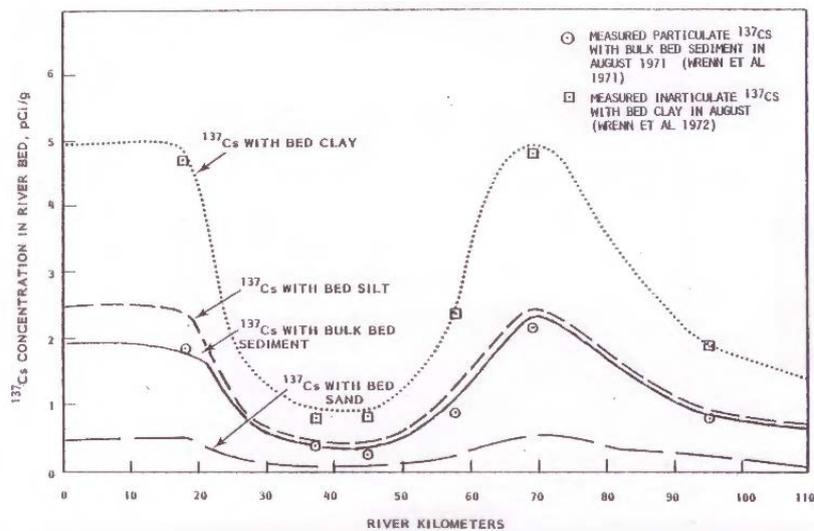


図2. 3次元 FLESCOT の適応例：ハドソン川河口付近での河川底に蓄積した ^{137}Cs のモデル予測値と実測値の比較

この研究の目的は JAEA の研究者が PNNL に訪問し、下記の項目を達成する事である。

- 福島原発事故で放出された放射性セシウム の環境動態予測に利用予定のシミュレーションコード TODAM、 FLESCOT 等の情報収集を行う。
- PNNL との今後の共同作業・研究について具体的内容を整理し、目標・方向性を明確にする。
- 福島 の環境汚染の評価及び浄化 に資するため、PNNL が実施しているハンフォード・サイトの浄化作業等の見学を通し、放射性物質の除染方法等についての情報収集を行う。

表 1 に JAEA の PNN 訪問時の agenda を示す。

表 1 . JAEA の PNN 訪問時の agenda

Monday, (02/04/2013)

TIME	TOPIC	LOCATION
9:15 am	ETB Badge Office	ETB Yasuo Onishi
10:00 - 11:30 am	Hanford and PNNL Activities	ISB1/115 Wayne Johnson
12:30 - 5:00 pm	TODAM Modeling	ISB1/115 Yasuo Onishi Thomas Yokuda

Tuesday, (02/05/2013)

9:00 - 9:45 am	RPL Tour	RPL Skip Kerschner
10:00 - 11:00 am	EMSL Tour	Dave Koppenaal
12:30 - 4:15 pm	TODAM Presentation	ISB1/234 Yasuo Onishi Thomas Yokuda
4:30 - 5:00 pm	PNNL Greeting	ETB/2537 Jud Virden

Wednesday (02/06/2013)

9:00 - 11:30 pm	Hanford Site Tour	TBD Karen Sinclair
-----------------	-------------------	-----------------------

TIME	TOPIC	LOCATION
<u>Wednesday (02/06/2013)</u>		
1:30 - 5:00 pm	TODAM modeling	ISB1/234 Yasuo Onishi Thomas Yokuda
<u>Thursday (02/07/2013)</u>		
		ISB1/105
10:00 - 12:00 pm	Groundwater modeling	Steve Yabusaki
1:00 - 5:00 pm	Cs Sorption 331 facility Tour	R. Jeffery Serne
<u>Friday (02/08/2013)</u>		
10:00 - 12:00 pm	Molecular Modeling	ISB1/105 Andy Felmy, EMSL Staff
1:00 - 5:00 pm	Molecular Modeling	ISB1/105 Andy Felmy, EMSL Staff
<u>Monday (02/11/2013)</u>		
10:00 - 12:00 pm	TEMPEST/FLESCOT Modeling	ISB1/115 Loren Eyler Yasuo Onishi
<u>Monday (02/11/2013)</u>		
1:00 - 5:00 pm	TEMPEST/FLESCOT Modeling	ISB1/115 Loren Eyler Yasuo Onishi
<u>Tuesday (02/12/2013)</u>		
10:00 - 12:00 pm	FLESCOT Modeling	ISB1/105 Yasuo Onishi Thomas Yokuda

TIME	TOPIC	LOCATION
1:00 - 5:00 pm	FLESCOT Modeling	ISB1/105 Yasuo Onishi Thomas Yokuda
<u>Wednesday (02/13/2013)</u>		
10:00 - 11:00 pm	FLESCOT Modeling	ISB1/105 Yasuo Onishi Thomas Yokuda
11:00 - 12:00 pm		
1:00 - 2:00 pm	Monitoring	ISB1/105 Robert Peterson
2:00 - 4:00 pm	Watershed Modeling	ISB1/105 Mark Wigmosta
4:00 - 5:00 pm	Environmental Remediation	Dawn Wellman
<u>Thursday (02/14/2013)</u>		
10:00 - 11:30 am	ParaFlow	ISB1/105 Dave Rector
12:30 - 1:30 pm	Spent-fuel Modeling	ISB1/105 Harold Adkins
1:30 - 5:00 pm	Path Forward-River Modeling	ISB1/105 Yasuo Onishi Thomas Yokuda
<u>Friday (02/15/2013)</u>		
10:30 - 11:30 am	Meet with Director Kluse	ROB/1106
1:00 - 5:00 pm	Path forward	ISB1/105

TIME	TOPIC	LOCATION
	<ul style="list-style-type: none">• 3-D modeling• Molecular Modeling• Cesium Sorption	All
5:00 pm	Adjourn	

2.0. 非定常、1次元、河川シミュレーションコードTODAM

TODAM (Time-dependent One-dimensional Degradation and Migration) は河川系における放射性核種や化学毒性物質の移行をシミュレートする数値計算コードである。このコードは以下の項目について計算することができる。

- 水中において
 - 浮遊土壌の移行
 - 砂
 - シルト
 - 粘土
 - 水溶性の放射性物質の濃度
 - 浮遊土壌に吸着した放射性物質の濃度
 - 砂に吸着した放射性物質
 - シルトに吸着した放射性物質
 - 粘土に吸着した放射性物質
- 河川底において
 - 浮遊土壌の沈殿と河川土壌の浸食による河川底の高度の変化
 - 2次元（深さ方向と流れ方向）の河川底土壌のパーセントの変化
 - 砂のパーセント
 - シルトのパーセント
 - 粘土のパーセント
 - 2次元（深さ方向と流れ方向）の河川底土壌に吸着した放射性物質の濃度
 - 河川底砂に吸着した放射性物質
 - 河川底シルトに吸着した放射性物質
 - 河川底粘土に吸着した放射性物質。

TODAM は河川の流れをシミュレートする数値計算コードと組み合わせて次の項目も計算する：

- 河川の深さ
- 河川の流れの速度。

TODAM の開発者、大西博士が TODAM の下記につき基礎事項の説明を行った：

- 理論とモデル描写
- モデルの構造
- 入力データの組織
- モデル適応方過去の適応例
- 福島河川適応の考慮すべき点。

このように、TODAM は放射性核種と吸着しうる浮遊物として 3 つの典型的な浮遊砂、すなわち砂・シルト・粘土を区別し、それらの吸着係数 K_d をパラメータとし、異なる吸着挙動を扱えるようにしている。又吸着の速度も考慮している。河床部については一般に土壌の深さにより汚染物質の濃度が異なることから、河床の土壌を複数の層に分割し、各層ごとに汚染物質の濃度を計算できるようになっている。

河川の流れが河床の土壌を侵食するのに必要なせん断応力、砂・シルト・粘土の存在割合等は河川によって異なるため、正確なシミュレーションを行うには河川ごとに河床の土壌の性質（ K_d 値、せん断応力、土壌の割合等）を測定することが重要である。

これまでにチェルノブイリの適応例（図1）やニューメキシコ州モータンダッド峡谷で起きた洪水による ^{239}Pu の移行のシミュレーション（図2と図3）、オークリッジ国立研究所からテネシー川に属するクリンチ川に流出した汚染のシミュレーション等を行ってきた。チェルノブイリ近郊のプリピャチ川とドニエプル川での ^{90}Sr 濃度の変動を解析した例では、土壌から河川に流れた実測値と雪解け時の流出増加傾向等も取り込むことにより実測したデータと良好な一致を示した。

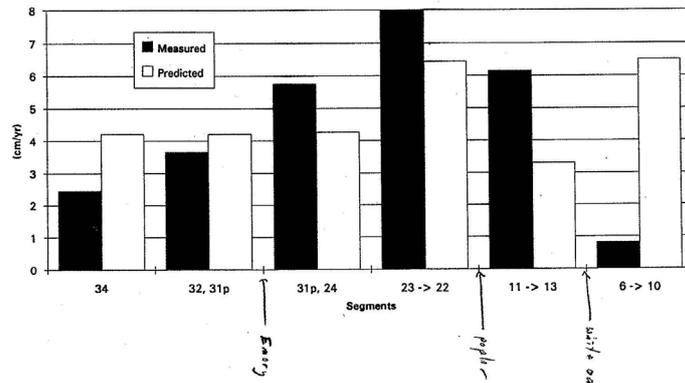


図2. クリンチ川の土壌蓄積予測と実測値

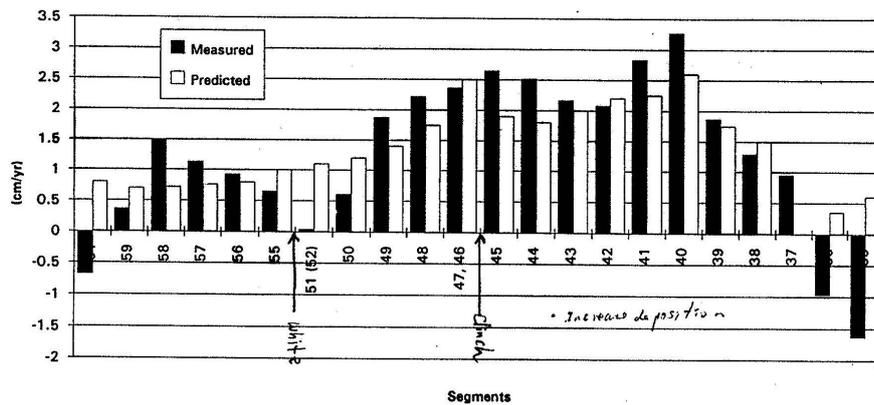


図3. テネシー川の土壌蓄積予測と実測値

TODAMはこのほか、ロシアのシベリアのキシチムサイトから流出している ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 238 、 239 、 ^{240}Pu の Obu 川、Irtys 川、Tobol 川と Techa 川での移行、蓄積、侵食のシミュレーション、ニューヨーク州の Cattaraugus, Buttermilk, Frank Creeks 中での ^{137}Cs と ^{90}Sr の移行、蓄積、侵食のシミュレーション、アイオワ州の Four Mile Creek, Wolf Creek での殺虫剤、Alachlor の移行、蓄積、侵食のシミュレーションとその殺虫剤の魚への影響を予測、ミネソタ州の Monticello Stream Channels での 化学毒生物、Diazinon のシミュレーション等にも使われた。

PNNL は実際に TODAM を使い JAEA に TODAM の使用を実演した。TODAM のコードは既に試験的に JAEA に導入されており、JAEA でいくつかの試計算を行っている。JAEA は今回福島川の試計算結果を報告し、今後の計算項目について大西博士と確認を行った。具体的には、現在計算を進めている福島県の請戸川のシミュレーションを PNNL でも独立に行い両者の結果を比較するととも

に、検証を行うこととした。さらに複数の河川について同様の計算及び比較・検証を進めることとした。

JAEA で試算したいくつかの例では計算が発散しており、そのような場合の対処・確認方法を大西博士は次の5点をまず調べることを推奨した：

- 流体のマス・バランスがセグメントの前後で満たされていないと不安定となる（満たされていない場合満たすように修正計算要
- 計算セグメントの大きさが急激に変化する。
- 汚染源の値が大きすぎると（ソースタームが大きいと）濃度は負になる。これを簡単な支配方程式で示した。

$$\frac{\partial c}{\partial t} + s = 0 \quad (1)$$

c = 汚染物の濃度

s = 汚染源の単位時間当たりのシンク又はソース

t = 時間。

次のタイムステップでの濃度、 c は

$$c_{t+\Delta t} = c_t - s\Delta t \quad (2)$$

ゆえにもし s 又は Δt が大きければ、 $c_{t+\Delta t}$ が負の値になる可能性がある。しかし物理的には起こりえないので、 $c_{t+\Delta t}$ が正であることを確認する。

- 次の条件を満たす時は不安定になる

$$u\Delta t > \Delta x \quad (3)$$

u = 河川の速度

Δx = 流れ方向のひとつの計算セルの長さ

- 次の条件を満たす時は不安定になる

$$\sqrt{2\varepsilon_x \Delta t} > \Delta x \quad (4)$$

ε_x = 流れ方向の拡散係数 (IAEA 2001)

3.0. 非定常、2次元の FETRA コード

非定常、2次元の FETRA(Finite Element Transport)コードは 河川と海岸・沿岸と海での放射性物質や化学毒性物質の移行をシミュレーションする計算コードである。TODAM と同じようにこのコードも以下の項目について計算することができる：

- 水中において
 - 浮遊土壌の移行
 - 砂
 - シルト
 - 粘土
 - 水溶性の放射性物質の濃度
 - 浮遊土壌に吸着した放射性物質の濃度
 - 砂に吸着した放射性物質
 - シルトに吸着した放射性物質
 - 粘土に吸着した放射性物質
- 河川底において
 - 浮遊土壌の沈殿と河川土壌の浸食による河川底の高度の変化
 - 3次元（深さ方向と流れ方向）の河川底土壌のパーセントの変化
 - 砂のパーセント
 - シルトのパーセント
 - 粘土のパーセント
 - 3次元（深さ方向と流れ方向）の河川底土壌に吸着した放射性物質の濃度
 - 河川底砂に吸着した放射性物質
 - 河川底シルトに吸着した放射性物質
 - 河川底粘土に吸着した放射性物質。

このモデルは海岸線近くで、砕波（wave breaking）の効果も入れた波による土壌の侵食の作用のシミュレーションを行う事が可能である。これまでに、FETRA は原子力機構の東海プラントから海中に放出された ^{137}Cs と $^{238,239}\text{Pu}$ の寒中での移行、海底への沈殿と海底からの侵食について、砕波も含めた波の効果を入れて、シミュレーションを行った実績がある。その他、イギリスのセラフィールドサイトから Irish Sea に放出された ^{137}Cs と $^{238,239,240}\text{Pu}$ の海中と海底での移行、蓄積、侵食の予測等にも使われた。

又除染作業の効果の評価の為に使われた2例についても紹介した。1つはチェルノブイリの例である。プリピャット川のチェルノブイリ原発の対岸にある洪水領域は、原発事故で汚染された地域の中で ^{90}Sr で最も汚染された場所である。この汚染された洪水地域の ^{90}Sr は洪水によって川に運び込まれてしまうが、特に4年に一度の頻度で起こる小さな洪水は、他の大きな洪水に比べて水量が少なく、 ^{90}Sr が希釈されないため、水中の ^{90}Sr 濃度上昇に最も寄与するイベントである。その洪水時に汚染された洪水領域からプリピャット川に流されてくる ^{90}Sr はドニエプル川の ^{90}Sr の半分を占める。その為プリピャット川の川沿いに堤防を作り、洪水時にもその汚染された洪水領域に川水が流れ込まない対策をとった。図4に FETRA モデルで予測した4年に一度の洪水時に堤防（新しい堤防）が無い場合の水の流れと ^{90}Sr 濃度分布（上2つの図）と堤防（新しい堤防）を作った場合の ^{90}Sr 濃度分布（一番下の図）を示す。この図に示すように、堤防を作るとプリピャット川の ^{90}Sr 濃度が半分に減った。この予測は実際に堤防を作る前後のデーター比較を通して正しさが実証された。堤防は ^{90}Sr の濃度を下げるのに非常に有効だったので、その後プリピャット川のチェルノブイリ原発側にも堤防を作り、 ^{90}Sr の移行抑制に役立った。

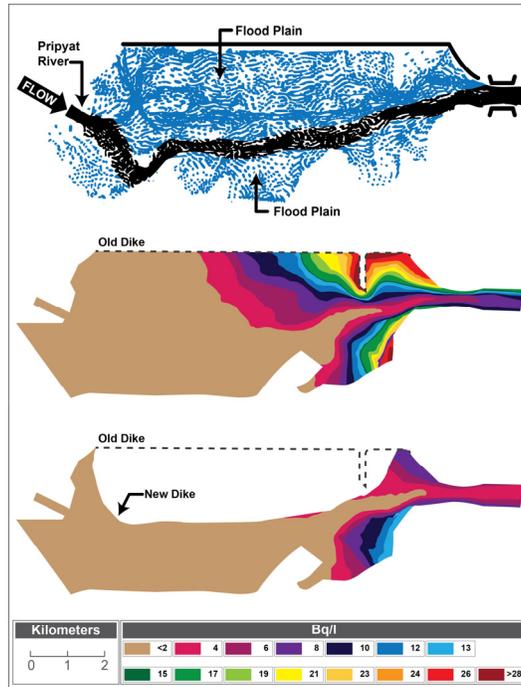


図4. FETRAによるプリピャット川の洪水地域の⁹⁰Srの除染モデル評価

もう一つの適用例として、バージニア州のJames川河口付近に放出された殺虫剤、Keponeが魚を汚染し、漁業が禁止された後、商業用の漁業再開を目的とした河川の除染計画策定のために行われたシミュレーションの例である。除染は汚染された河床の土壌を取り除くというものだった。その作業効果為を調べる為、FETRAでKeponeの動向を予測し、除染対策の評価を行った。図5に実測値とFETRAの予想の比較を示す。除染はJames川の汚染された河床土壌の除去が想定された。図6に様々な除染箇所を実施したとして、どれだけJames川がきれいになるかのFETRAの予測を示す。この図の下に示したA～J河床の土壌を取り除いた時のKeponeの水中の予測された濃度を示す。

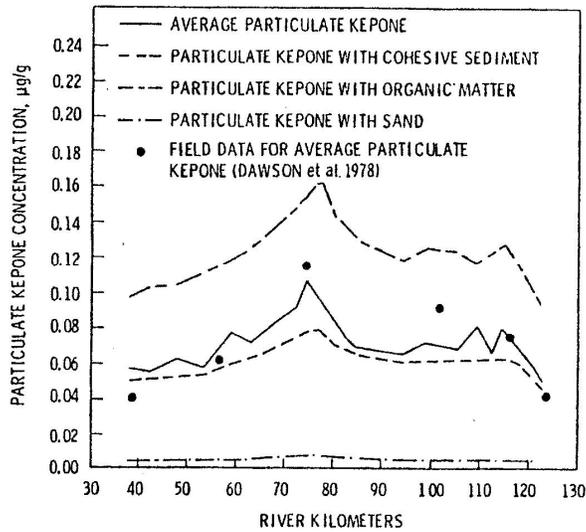


図 5. FETRA による James 川における Kepone 濃度分布と実測値の比較

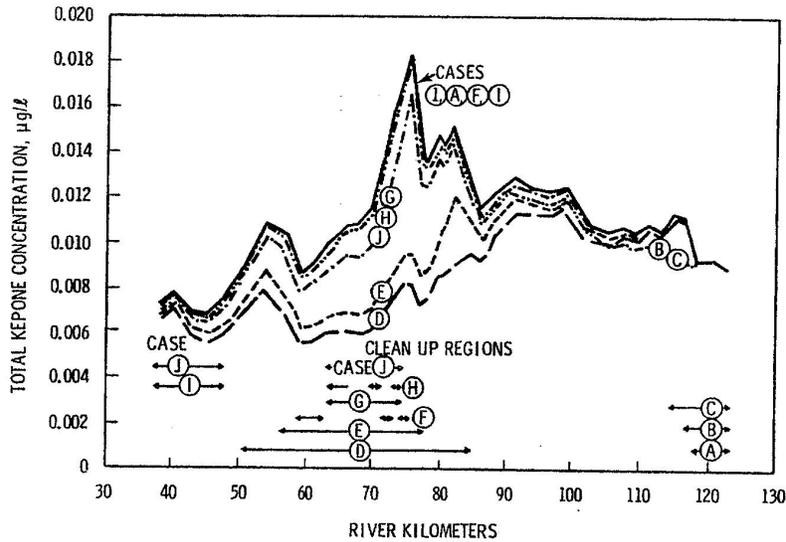


図 6. FETRA による James 川除染効果予測

FETRA の福島県の河川への適用については、現在システム計算科学センターで行っている iRIC (International River Interface Cooperative) による 2 次元河川シミュレーションによる河川の流れのシミュレーションの結果を FETRA (Finite Element Transport) の入力として用いる事で、2 次元河川の堆積物輸送を評価する事を JAEA は検討する事となった。

ただし、iRIC は有限差分法、FETRA は有限要素法であるため、データのやり取りに工夫が必要である事が議論になり、JAEA はこの点について調査を続行する事になった。河川の流れを解析する RMA-2 コード (有限要素法) と FETRA を組み合わせたバージョンが作られており、これを用いた河川の解析も JAEA は検討することとなった。

4.0 非定常、3次元の FLESCOT コード

非定常、3次元 FLESCOT (Flow, Energy, Salinity, Sediment, Contaminant Transport) コードは河口付近、沿岸と海洋モデルである。FLESCOT は3次元流体コード TEMPEST (Transient Energy Momentum Pressure Equation Solution in Three-dimensions)の拡張版で、海洋中での汚染物の移行をシミュレーションが可能にされたものである。

4.1. TEMPEST コード

TEMPEST はアメリカ、エネルギー省の増殖炉研究用に作られた予測の信頼性が証明された最先端の熱流体コードである。その数式は下記を表わしたものである：

- Conservation of mass (continuity)
- Conservation of momentum (Newton's second law)
- Conservation of energy (1st law of thermodynamics)
- Conservation of turbulent kinetic energy, k
- Conservation of turbulent kinetic energy dissipation, ϵ
- Conservation of mass constituents, Ci
- Conservation of electric charge, ρe .

Conservation of mass (continuity)は

$$\frac{1}{R^\beta} \frac{\partial R^\beta U}{\partial R} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial W}{\partial X} + \frac{\partial V}{\partial Z} = 0$$

Conservation of momentum

R-方向：

$$\begin{aligned} & \frac{\partial U}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta U U) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial X} (W U) + \frac{\partial}{\partial Z} (V U) - \beta \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right) \frac{W^2}{R} - F_U \\ & = \frac{1}{\rho_0} \left[- \frac{\partial P}{\partial R} + \rho G_R + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \epsilon \frac{\partial U}{\partial R}) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} (\epsilon \frac{\partial U}{\partial X}) + \frac{\partial}{\partial Z} (\epsilon \frac{\partial U}{\partial Z}) + S_R \right] \\ & S_R = -\beta \epsilon \left(\frac{U}{R^2} + \frac{2}{R^2} \frac{\partial W}{\partial X} \right) + \frac{\partial \epsilon}{\partial R} \frac{\partial U}{\partial R} + \frac{\partial \epsilon}{\partial X} \frac{\partial}{\partial R} \left(\frac{W}{R^\beta} \right) + \frac{\partial \epsilon}{\partial Z} \frac{\partial V}{\partial R} - F_R(U) \end{aligned}$$

X-方向

$$\begin{aligned} & \frac{\partial W}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta U W) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial X} (W W) + \frac{\partial}{\partial Z} (V W) + \beta \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right) \frac{U W}{R} + F_W \\ & = \frac{1}{\rho_0} \left[- \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial P}{\partial X} + \rho G_x + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \epsilon \frac{\partial W}{\partial R}) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} (\epsilon \frac{\partial W}{\partial X}) + \frac{\partial}{\partial Z} (\epsilon \frac{\partial W}{\partial Z}) + S_x \right] \\ & S_x = \frac{\beta \epsilon}{R^2} (2 \frac{\partial U}{\partial X} - W) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \epsilon}{\partial R} \left(\frac{\partial U}{\partial X} - \beta W \right) \\ & \quad + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial \epsilon}{\partial X} \left(\frac{\partial W}{\partial X} + 2\beta U \right) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \epsilon}{\partial Z} \frac{\partial V}{\partial X} - F_x(W) \end{aligned}$$

Z-方向

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \mathbf{U}\mathbf{V}) + \frac{1}{R^\beta} (\mathbf{W}\mathbf{V}) + \frac{\partial}{\partial Z} (\mathbf{V}\mathbf{V}) + \mathbf{F}_v \\
&= \frac{1}{\rho_o} \left[-\frac{\partial \mathbf{P}}{\partial Z} + \rho \mathbf{G}_z + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \epsilon \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial R}) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} (\epsilon \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial X}) + \frac{\partial}{\partial Z} (\epsilon \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial Z}) + \mathbf{S}_z \right] \\
\mathbf{S}_z &= \frac{\partial \epsilon}{\partial R} \frac{\partial \mathbf{U}}{\partial Z} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \epsilon}{\partial X} \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial Z} + \frac{\partial \epsilon}{\partial Z} \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial Z} - \mathbf{F}_z(\mathbf{V})
\end{aligned}$$

Turbulent Kinetic Energy:

$$\begin{aligned}
& \rho_o \left[\frac{\partial \mathbf{k}}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \mathbf{U}\mathbf{k}) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial X} (\mathbf{W}\mathbf{k}) + \frac{\partial}{\partial Z} (\mathbf{V}\mathbf{k}) \right] \\
&= \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} \left(R^\beta \epsilon_k \frac{\partial \mathbf{k}}{\partial R} \right) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} \left(\epsilon_k \frac{\partial \mathbf{k}}{\partial X} \right) + \frac{\partial}{\partial Z} \left(\epsilon_k \frac{\partial \mathbf{k}}{\partial Z} \right) - \rho \xi + \mathbf{S}_k \\
\epsilon_k &= \mu + \frac{\mu_T}{\sigma_k} \\
\mathbf{S}_k &= \mathbf{P}_k + \mathbf{G}_k
\end{aligned}$$

Turbulent Kinetic Energy

Shear Production

$$\begin{aligned}
\mathbf{P}_k &= \mu_T \left\{ 2 \left[\left(\frac{\partial \mathbf{U}}{\partial R} \right)^2 + \left(\frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial X} + \beta \frac{\mathbf{U}}{R} \right)^2 + \left(\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial Z} \right)^2 \right] \right. \\
&+ \left. \left(\frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \mathbf{U}}{\partial X} + \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial R} - \beta \frac{\mathbf{W}}{R} \right)^2 + \left(\frac{\partial \mathbf{U}}{\partial Z} + \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial R} \right)^2 + \left(\frac{\partial \mathbf{W}}{\partial Z} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \mathbf{V}}{\partial X} \right)^2 \right\}
\end{aligned}$$

Buoyant Production

$$\mathbf{G}_k = \frac{\mu_T}{\rho \sigma_T} \left(\frac{\partial \rho}{\partial R} \mathbf{G}_R + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial \rho}{\partial X} \mathbf{G}_X + \frac{\partial \rho}{\partial Z} \mathbf{G}_Z \right)$$

Dissipation of Turbulent Kinetic Energy

$$\begin{aligned}
& \rho_o \left[\frac{\partial \xi}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \mathbf{U}\xi) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial X} (\mathbf{W}\xi) + \frac{\partial}{\partial Z} (\mathbf{V}\xi) \right] \\
&= \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} \left(R^\beta \epsilon_\xi \frac{\partial \xi}{\partial R} \right) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} \left(\epsilon_\xi \frac{\partial \xi}{\partial X} \right) + \frac{\partial}{\partial Z} \left(\epsilon_\xi \frac{\partial \xi}{\partial Z} \right) \\
&+ \frac{1}{K} (\mathbf{S}_\xi - \rho \mathbf{C}_{\xi 2} \xi) \xi
\end{aligned}$$

Thermal Energy

$$\begin{aligned}
& \rho_o c \left[\frac{\partial \mathbf{T}}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \mathbf{U}\mathbf{T}) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial X} (\mathbf{W}\mathbf{T}) + \frac{\partial}{\partial Z} (\mathbf{V}\mathbf{T}) \right] \\
&= \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} \left(\sigma R^\beta \frac{\partial \mathbf{T}}{\partial R} \right) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} \left(\sigma \frac{\partial \mathbf{T}}{\partial X} \right) + \frac{\partial}{\partial Z} \left(\sigma \frac{\partial \mathbf{T}}{\partial Z} \right) + \dot{\mathbf{Q}}
\end{aligned}$$

Constituent

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial \omega_i}{\partial t} + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} (R^\beta \mathbf{U}\omega_i) + \frac{\partial}{\partial Z} (\mathbf{V}\omega_i) + \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial X} (\mathbf{W}\omega_i) \\
&= \frac{1}{R^\beta} \frac{\partial}{\partial R} \left(\mathbf{D}_\omega R^\beta \frac{\partial \omega_i}{R^{2\beta}} \right) + \frac{1}{R^{2\beta}} \frac{\partial}{\partial X} \left(\mathbf{D}_\omega \frac{\partial \omega_i}{\partial X} \right) + \frac{\partial}{\partial Z} \left(\mathbf{D}_\omega \frac{\partial \omega_i}{\partial Z} \right) + \dot{\omega}_i
\end{aligned}$$

Electric Field

$$\frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} \left(\sigma \frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{R}} \right) + \frac{1}{R^2} \frac{\partial}{\partial X} \left(\sigma \frac{\partial \Phi}{\partial X} \right) + \frac{\partial}{\partial Z} \left(\sigma \frac{\partial \Phi}{\partial Z} \right) = i_p$$

使用できる座標は Cartesian coordinates, cylindrical coordinates, Spherical coordinate と general curvilinear coordinates であり、Finite Volume method を使っている。さまざまは条件で予測確認は行われた。図7は3次元ジェット velocity 分布の TEMPEST の計算と実測値との比較であり、非常に良い結果を示している。

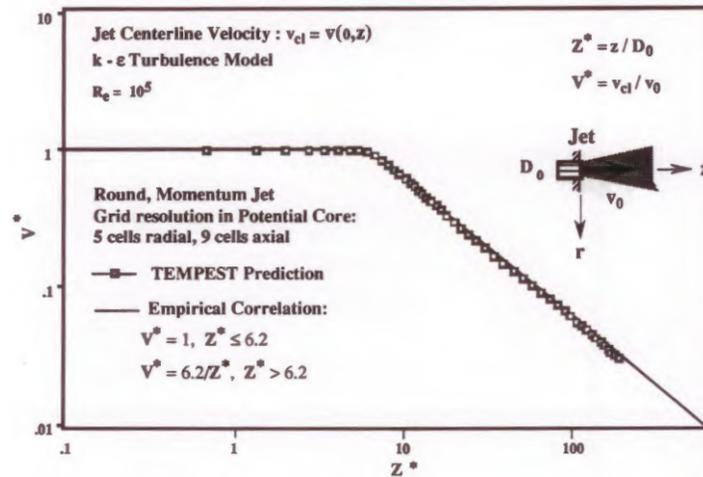


図7. 3次元 Round jet

TEMPEST の沿岸地域の適用例として、カルフォルニアの Diablo Canyon 原発から放出される温排水の海洋希釈のシミュレーションを挙げる。図8に Diablo Canyon 原発付近とその温排水放出を示す。



図8. Diablo Canyon 原発から放出された温排水

海岸沿いの海流、潮の満ち引き、風などの変化によって非常に複雑な温排水の移行が起こる。この発電所では 温排水により敷地境界の海域で水温が周囲より摂氏二度上昇した場合、原子炉を停止しなければならないという規則になっている。発電所では高い費用をかけて周囲の海域の水温

を常にモニターし、同時に海流、風向き等の詳細なデータも定常的に観測していた。PNNL は電力会社の依頼を受け、過去に観測された様々な風向き、海流、潮位変化等の条件下での水温を計算し、実測値と比較した。その結果、計算と実測値が非常に良く一致したため、様々な気象条件下での水温変化を計算で予測して二度以下の上昇に抑えられることを保証した。それにより、この発電所ではモニタリングを将来行わなくてよいと政府が明言した。

Electric heated glass melters の計算例は図9と図10に示す。

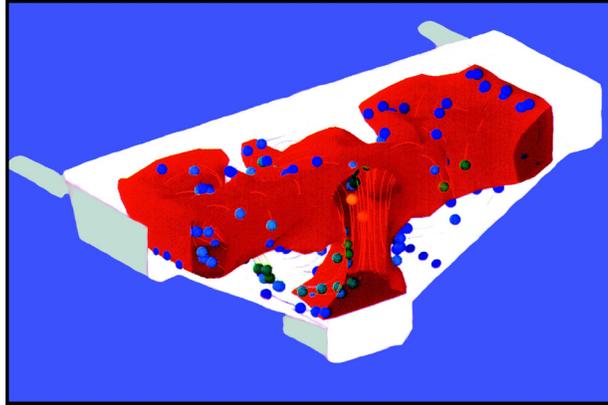


図9. West Valley Three-Electrode Melter with Sloping Sides

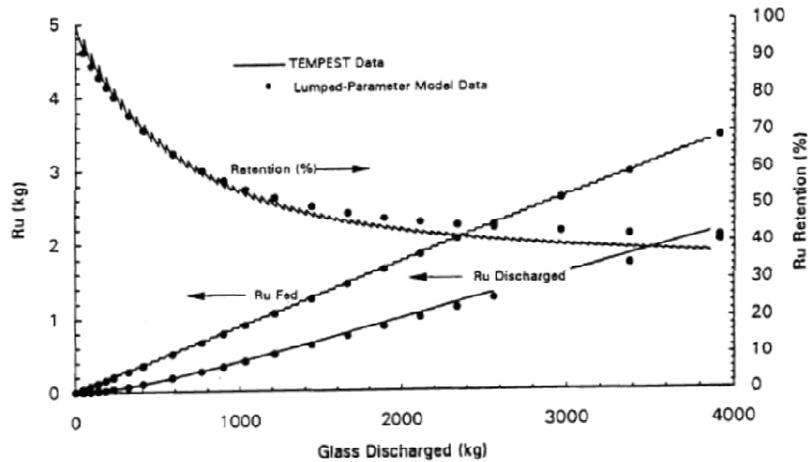


図10. ハンフォード Melter

ハンフォードの廃棄物貯蔵タンク内でのポンプによる廃棄物混合シミュレーションの例を図11に示す。

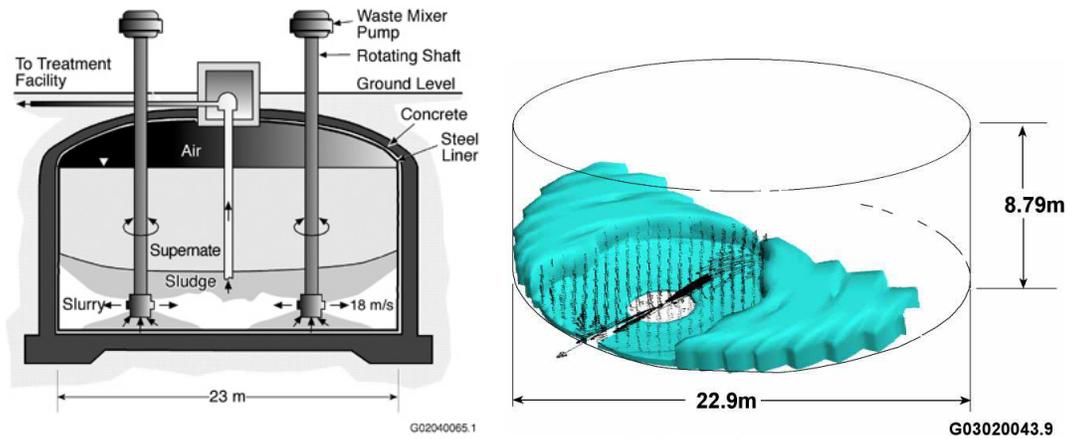


図 11. ハンフォードの廃棄物混合

このように TEMPEST は 広範囲に適用でき、正確な予測結果を示している。

4.2. Chemically Reactive Fluid Dynamic Transport Model, ARIAL コード

TEMPEST コードに化学変化を起こす流体にも適応できるように改良を加えたコードが ARIAL である。ARIAL は下記のシミュレーションを行う (Onishi et al. 2005)。

- 流体
 - Newtonian and non-Newtonian flows
 - turbulence (k-ε model)
 - heat transfer
 - mass transport of solids, dissolved species, and gases
- 化学変化
 - equilibrium aqueous reactions
 - adsorption/desorption
 - kinetic reactions of solids precipitation and dissolution
- Estimates physical properties and density
 - viscosity, shear stress, yield strength
 - density of liquid and mixed slurry

化学変化の数式は以下のとおりである。

Equilibrium Chemistry :

Minimize Gibb' s Free Energy

$$G = \sum_{j=1}^{ns} \mu_j n_j$$

Subject to the mass and charge balance :

$$\sum_{j=1}^{ns} A_{ij} n_j = b_i$$

$$\sum_{j=1}^{nas} z_j n_j = 0$$

$$n_j \geq 0$$

Kinetic Chemistry

$$\frac{d[C_{si}]}{dt} = \{k_{i1} + k_{i2}[C_{si}]\} \left\{1 - \frac{Q_i}{K_i}\right\}$$

$$\frac{d[C_{wj}]}{dt} = a_{ij} \frac{d[C_{si}]}{dt}$$

ハンフォードの貯蔵タンクの放射性廃棄物の化学変化のシミュレーションの適応例を図 1 2 と図 1 3 に示す。

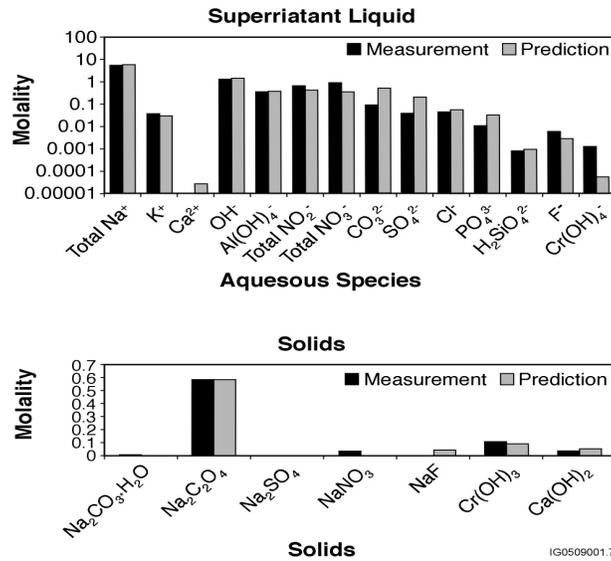


図 1 2. ハンフォード貯蔵タンク内の放射性廃棄物の化学変化の予想と実測値

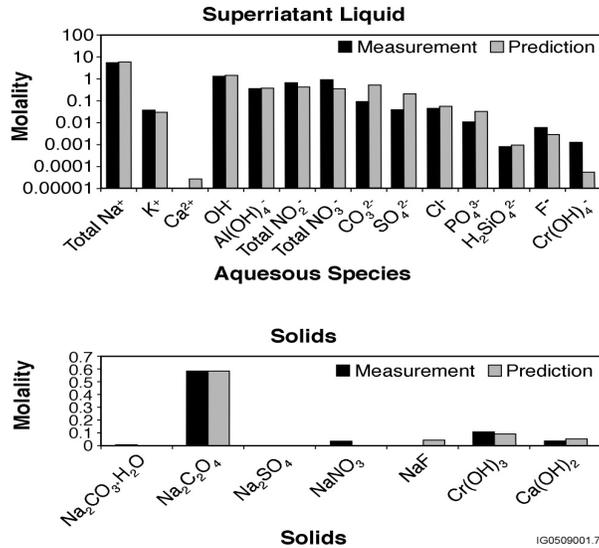


図 1 3. ハンプフォード貯蔵タンク内の放射性廃棄物に水を加えた場合の化学変化の予想と実測値

次の化学反応を起こすハンプフォードの放射性廃棄物をタンク内で水と交差させた場合の化学変化と廃棄物のポンプによる混合のシミュレーションの例を図 1 4 に示す。

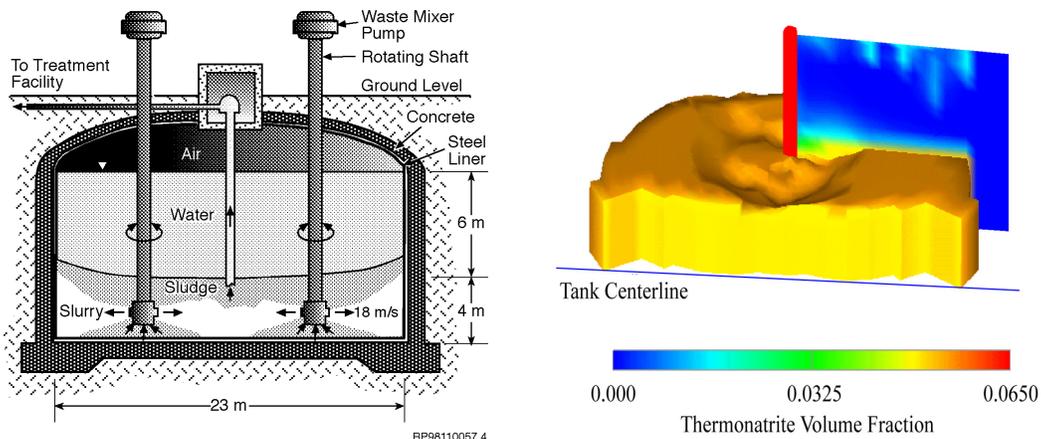
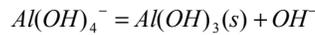
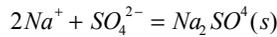
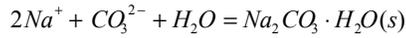
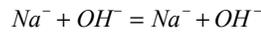
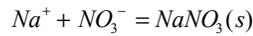
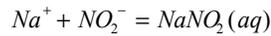
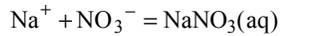


図 1 4. ARIEL の化学変化を起こす放射性物質の水との混合と化学変化のシミュレーション

4.3. FLESCOT コード

非定常、3次元 FLESCOT コードは TEMPEST コードを拡張したモデルで、複雑な3次元現象が起きている海岸沿岸地域、河川河口地域、海洋、湖等における水溶性の汚染物と土壤に吸着された汚染物の移行と海底での蓄積変化を計算する (Onishi et al. 1992, 1993)。

- 流れの流速と深さ
 - 海流
 - 潮の満ち干き
 - 風
 - 波
 - 川野流れ
 - 温度差による density current
 - 塩度差による density current
- Turbulent kinetic energy and its dissipation
- 温度分布
- 塩分濃度分布
- 浮遊土壤の移行
 - 砂
 - シルト
 - 粘土
- 水溶性の放射性物質の濃度
- 浮遊土壤に吸着した放射性物質の濃度
 - 砂に吸着した放射性物質
 - シルトに吸着した放射性物質
 - 粘土に吸着した放射性物質
- 河川底において
 - 浮遊土壤の沈殿と河川土壤の浸食による河川底の高度の変化
 - 3次元 (深さ方向と流れ方向) の河川底土壤のパーセントの変化
 - 砂のパーセント
 - シルトのパーセント
 - 粘土のパーセント
 - 3次元 (深さ方向と流れ方向) の河川底土壤に吸着した放射性物質の濃度
 - 河川底砂に吸着した放射性物質
 - 河川底シルトに吸着した放射性物質
 - 河川底粘土に吸着した放射性物質

これらを下記の保存則とともに解く：

- fluid mass (the Continuity Equation)
- momentum (the Navier Stokes Equation) without hydrostatic pressure assumption
- turbulent kinetic energy
- turbulent kinetic energy dissipation
- thermal energy (the First Law of thermodynamics)
- mass of salt (salinity)

- mass of sediments
 - sand
 - silt
 - clay
- mass of dissolved radionuclide
- mass of particulate radionuclides adsorbed by
 - sand
 - silt
 - clay.

塩分濃度と土壌と汚染物の方程式は下に示す。

塩分濃度：

$$\frac{\partial \mathbf{S}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} (\mathbf{U}\mathbf{S}) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} (\mathbf{V}\mathbf{S}) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{Z}} (\mathbf{W}\mathbf{S}) = \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} \left(\epsilon_{\mathbf{R}} \frac{\partial \mathbf{S}}{\partial \mathbf{R}} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} \left(\epsilon_{\mathbf{X}} \frac{\partial \mathbf{S}}{\partial \mathbf{X}} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{Z}} \left(\epsilon_{\mathbf{Z}} \frac{\partial \mathbf{S}}{\partial \mathbf{Z}} \right)$$

i-th 土壌：

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \mathbf{C}_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} (\mathbf{U}\mathbf{C}_i) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} (\mathbf{V}\mathbf{C}_i) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{Z}} \left\{ (\mathbf{W} - \mathbf{W}_{\text{Si}}) \mathbf{C}_i \right\} \\ & = \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} \left(\epsilon_{\mathbf{R}} \frac{\partial \mathbf{C}_i}{\partial \mathbf{R}} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} \left(\epsilon_{\mathbf{X}} \frac{\partial \mathbf{C}_i}{\partial \mathbf{X}} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{Z}} \left(\epsilon_{\mathbf{Z}} \frac{\partial \mathbf{C}_i}{\partial \mathbf{Z}} \right) \\ & + \left(\frac{\mathbf{S}_{\text{Ri}}}{\mathbf{H}} - \frac{\mathbf{S}_{\text{Di}}}{\mathbf{H}} \right) + \mathbf{Q}_{\text{Ci}} \end{aligned}$$

H - Flow depth

Q_{ci} - Source of Ith sediment

SD_i - ith sediment deposition rate per unit surface area

SR_j - ith sediment erosion rate per unit surface area

WS_i - Settling velocity of ith sediment

水溶性汚染物濃度：

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \mathbf{G}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} (\mathbf{U}\mathbf{G}) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} (\mathbf{V}\mathbf{G}) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{Z}} (\mathbf{W}\mathbf{G}) = \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} \left(\epsilon_{\mathbf{R}} \frac{\partial \mathbf{G}}{\partial \mathbf{R}} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{X}} \left(\epsilon_{\mathbf{X}} \frac{\partial \mathbf{G}}{\partial \mathbf{X}} \right) + \frac{\partial}{\partial \mathbf{Z}} \left(\epsilon_{\mathbf{Z}} \frac{\partial \mathbf{G}}{\partial \mathbf{Z}} \right) + \dot{\mathbf{G}} \\ & \dot{\mathbf{G}} = -\lambda \mathbf{G} + \sum_j \mathbf{K}_j (\mathbf{C}_j \mathbf{K}_{\text{Dj}} \mathbf{G} - \mathbf{G}_j) + \sum_j \mathbf{K}'_j (\mathbf{C}_j \mathbf{K}'_{\text{Dj}} \mathbf{G} - \mathbf{G}_j) \\ & \quad - \frac{1}{\mathbf{H}} \sum_j \gamma_j (1-\text{POR}) \mathbf{D}_j \mathbf{K}_{\text{Bj}} (\mathbf{K}_{\text{Dj}} \mathbf{G} - \mathbf{G}_{\text{Bj}}) \\ & \quad - \frac{1}{\mathbf{H}} \sum_j \gamma_j (1-\text{POR}) \mathbf{D}_j \mathbf{K}'_{\text{Bj}} (\mathbf{K}_{\text{Dj}} \mathbf{G} - \mathbf{G}_{\text{Bj}}) \end{aligned}$$

- K_{BJ}, K'_{BJ} = TRANSFER RATE OF SPECIES FOR ADSORPTION AND DESORPTION, RESPECTIVELY WITH JTH NONMOVING SEDIMENT IN BED
 K_{DJ}, K'_{DJ} = DISTRIBUTION (OR PARTITION) COEFFICIENT BETWEEN DISSOLVED SPECIES AND PARTICULATE SPECIES ASSOCIATED WITH JTH SEDIMENT FOR ADSORPTION AND DESORPTION, RESPECTIVELY
 K_J, K'_J = TRANSFER RATE OF SPECIES WITH JTH SEDIMENT MOVING SEDIMENT FOR ADSORPTION AND DESORPTION, RESPECTIVELY
 G_{BJ} = PARTICULATE-SPECIES CONCENTRATION PER UNIT WEIGHT OF SEDIMENT IN JTH SEDIMENT SIZE FRACTION IN THE BED
 G_J = PARTICULATE-SPECIES CONCENTRATION ASSOCIATED WITH TH SEDIMENT (RADIONUCLIDE ACTIVITY OR WEIGHT OF SPECIES PER UNIT VOLUME)
 G = DISSOLVED-SPECIES CONCENTRATION (RADIONUCLIDE ACTIVITY OR WEIGHT OF SPECIES PER UNIT VOLUME)
 POR = POROSITY OF BED SEDIMENT
 γ_J = SPECIFIC WEIGHT OF JTH SEDIMENT
 λ = RADIONUCLIDE DECAY OR, CHEMICAL AND BIOLOGICAL DEGRADATION RATES OF SPECIES

土壌に吸着された i-th 汚染物濃度 :

$$\frac{\partial G_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial R} (UG_i) + \frac{\partial}{\partial X} (VG_i) + \frac{\partial}{\partial Z} \left\{ (W-W_{Si}) G_i \right\} = \frac{\partial}{\partial R} \left(\epsilon_R \frac{\partial G_i}{\partial R} \right) + \frac{\partial}{\partial X} \left(\epsilon_X \frac{\partial G_i}{\partial X} \right) + \frac{\partial}{\partial Z} \left(\epsilon_Z \frac{\partial G_i}{\partial Z} \right) + \dot{G}_i$$

$$\dot{G}_i = \lambda G_i - \frac{S_{Di}}{H} G_i + K_i (K_{Di} C_i G - G_i) + K'_i (K'_{Di} C_i G - G) + \frac{G_{Bi} S_{Ri}}{H} + Q_i$$

FLESCOT の幾つかの適応例を下に示す。

例 1. ハドソン川の ^{137}Cs 流失 :

ニューヨーク州のハドソン川沿いに河口から約 100 キロ上流にインディアン原発が存在する (図 15 参照)。その原発から ^{137}Cs が流出してハドソン川を汚染し、ニューヨーク市に向かって ^{137}Cs が移行した。原発周辺は、満潮時に海水が到達する場所であり、 ^{137}Cs が原発から河口に移行する際、海水中にあるカリウム等との競合で ^{137}Cs の土壌への吸着力が図 16 に示すように変化する。

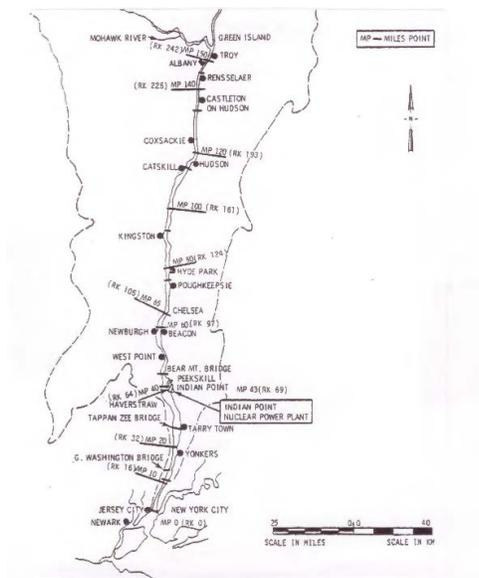


図 15. ハドソン川とインディアン原発

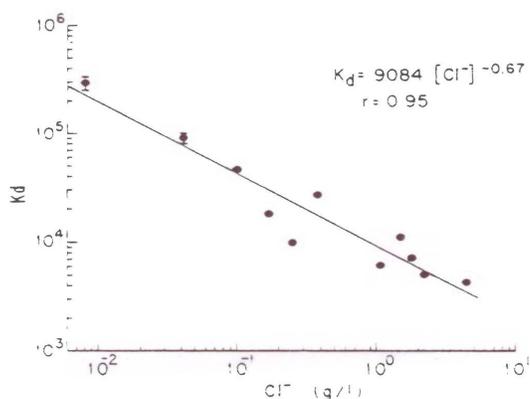


図 16、 ^{137}Cs の吸着能力の塩分濃度依存性

FLESCOTはこの ^{137}Cs の吸着能力の変化も取り入れて、 ^{137}Cs の移行を予測した。図17と図18はFLESCOTによる川の水中と河床での ^{137}Cs 予想値であり、実測値と良くあっている事を示している。

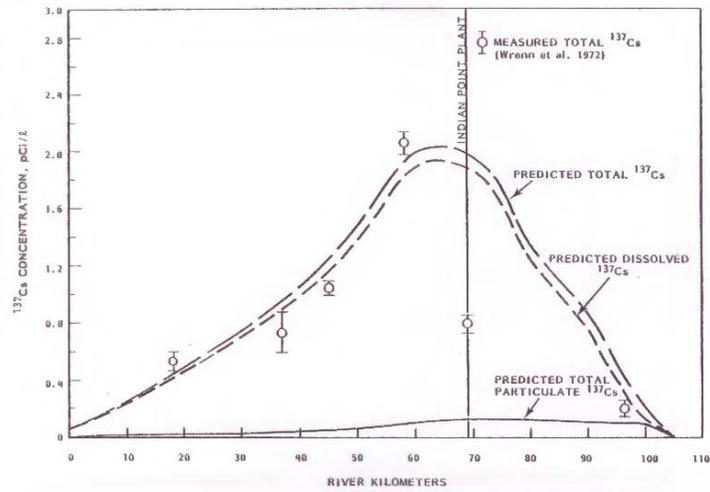


図 17. FLESCOT による水中の ^{137}Cs の予測と実測値

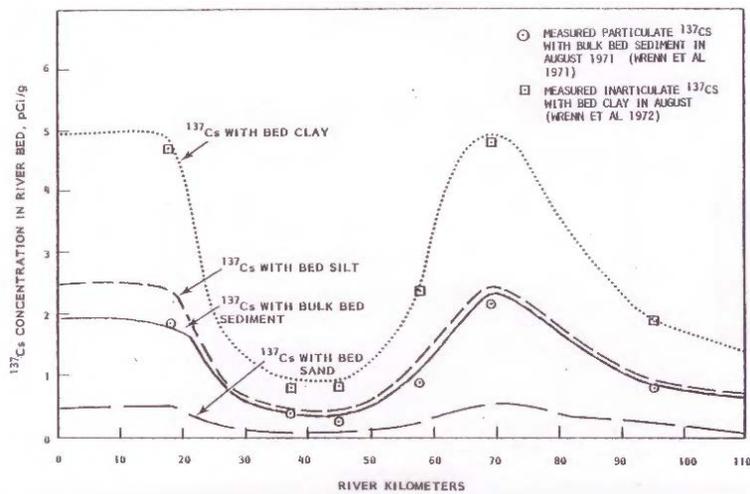


図 18. FLESCOT による河床での ^{137}Cs の予測と実測値

例 2. バザーズ湾とニューベッド港の除染評価:

FLESCOT の別の適応例はマサチューセッツ州バザーズ湾とニューベッド港の PCB と重金属による汚染の除染評価である (図 19 参照)。これ等の汚染物は土壤に吸着し、湾と港の底に蓄積し、PCB と重金属の放出が停止された後も長期に渡って汚染が続いた。この汚染でロブスターの漁業が禁止され、バザーズ湾とニューベッド港の除染が必要となった。図 19 にロブスターの汚染経路を示す。

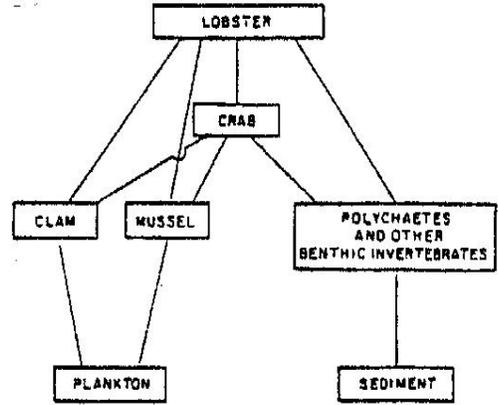
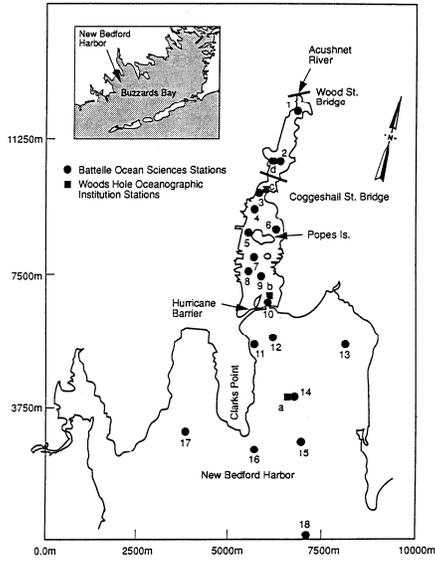


図 19. バザーズ湾とニューベッド港とロブスターの汚染経路

除染作業の最適地を選択し、その除染効果とロブスター漁の再開可能時期を予測する為に FLESCOT のシミュレーションが行われた。FLESCOT の予測と測定値を図 20 と図 21 に示す。これ等の FLESCOT の予測結果を図 19 に示したロブスターの汚染経路モデルに入力として入れ、ロブスターの将来の汚染濃度を予測した。

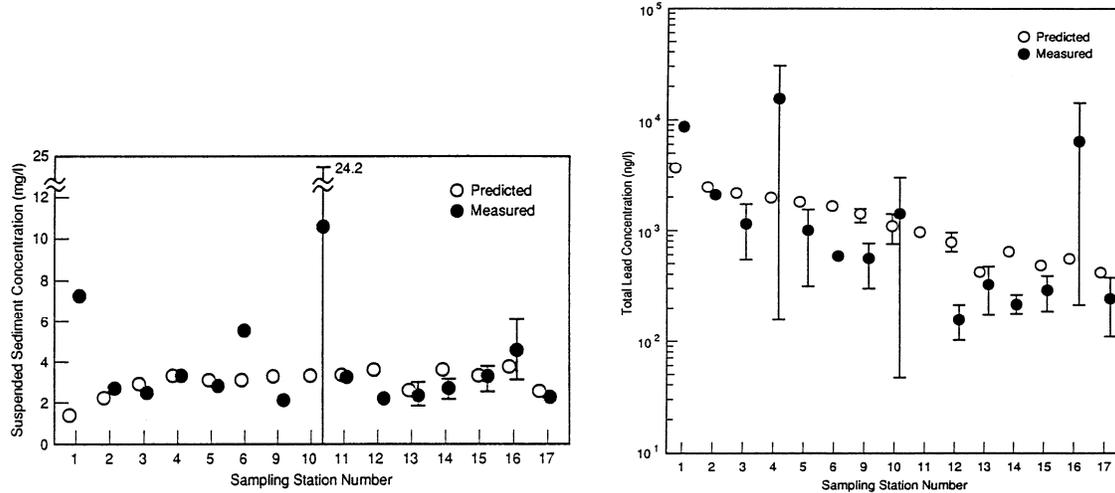


図 19. 土壌と汚染物濃度の FLESCOT の予測と測定値

例 3. 低レベル放射性物質の海洋投棄:

アメリカでは、国際規制で低レベル放射性物質の海洋投棄が禁止になる前は、ニューヨーク市から約 200 キロ沖にある水深 2800 メートルと 3800 メートルの大西洋の深海地に低レベル放射性物質を投棄した事があった。図 20 にその水深 2800 メートルと 3800 メートルサイトと、海洋表面と海底での海流と海底土壌を示す。

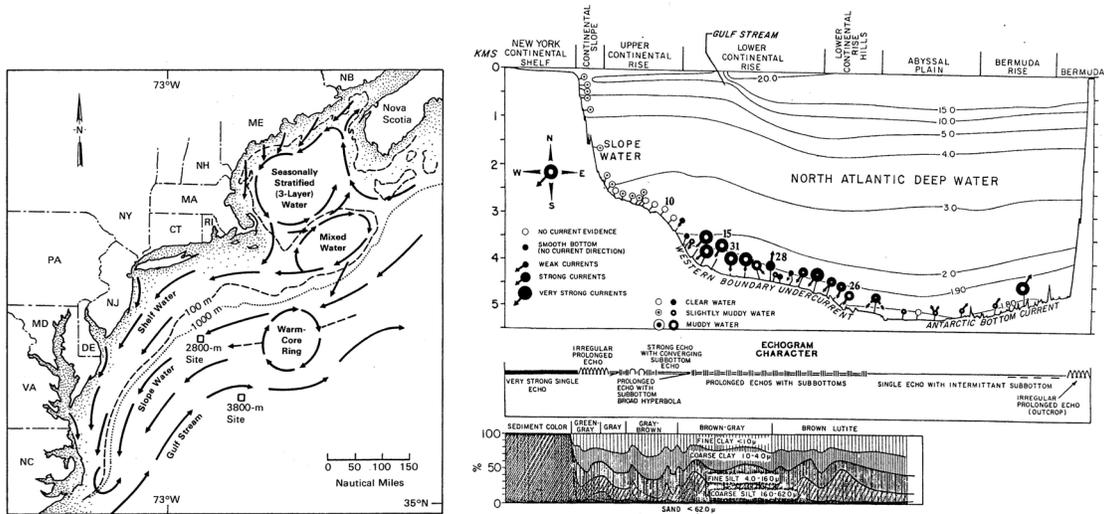


図 20. 水深 2800メートルと 3800メートルの低レベル放射性物質の海洋投棄サイト

FLESCOT を水深 2800メートルの海洋投棄サイト付近の低レベル放射性物質移行予測に適用し、海底に投棄された放射性物質のその後の移行のシミュレーションを行った。図 21 と図 22 は FLESCOT の予測を示す。

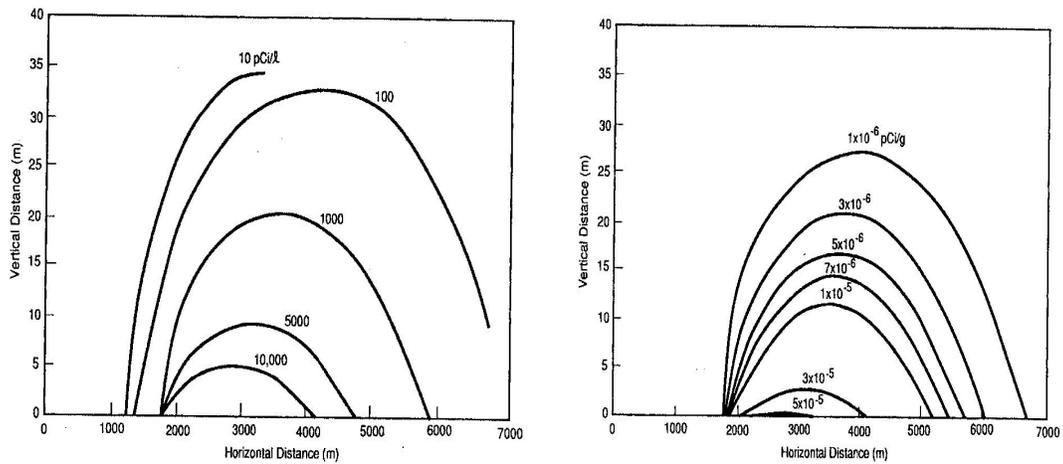


図 21. FLESCOT による水溶性放射性物質と吸着された放射性物質の水中濃度予想

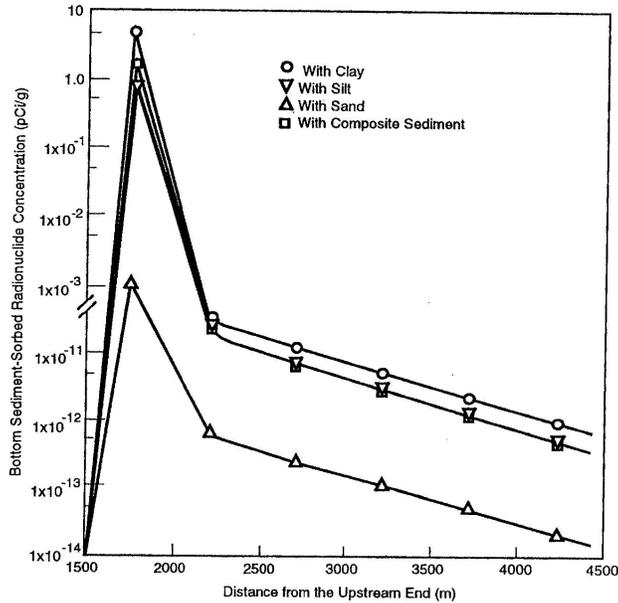


図 2 2. FLESCOT による土壤に吸着された放射性物質の海底濃度予想

これらの適用例が示すように非定常、3次元 FLESCOT コードは複雑な 3次元現象が起こっている海岸沿岸地域、河川河口地域、海洋、湖等での水溶性と土壤に吸着された汚染物の移行と海底での蓄積変化を計算可能である。

このようなシミュレーションを正確に行うには水理学に関する深い理解と知識、経験が必要であり、単にコードを走らせるだけでは現象の本質を掴めないことを述べた。又このようなシミュレーションを現地での測定を行う前に実行し、現地測定最適化を図ることは非常に大切であると説明した。又これ等の計算により、汚染物の移行蓄積にどの移行過程・化学的挙動が強い影響を与えるかという感度解析を行うことで効果的に必要な実験を行う目安にすることは大切である。このように PNNL は様々な側面から JAEA に協力することが可能であるかを述べた。

図 8 で示した、ディアブロキャニオン原子力発電所から太平洋に放出されている温排水の PNNL のモデル計算例のように、シミュレーションによる正確な予想はモニタリングを不必要としないまでも、その頻度と精度を大幅に減らせる可能性がある。これは福島の中小川川河口付近での沿岸の汚染土砂移動における計算の役割を考える上で重要である。沿岸域での外部被ばくおよび海産物へのセシウムの移行による内部被ばくを抑えるには、砂浜や海底土壤の線量測定および海産物の放射能濃度の継続的あるいは頻繁なモニタリングが必要であると考えられる。しかし土壤や海産物の放射能濃度測定には台数の限られたゲルマニウムカウンタによる長時間の測定が必要であり、測定に使えるリソースを最適に配分する必要がある。また浅い海域での海底土壤のサンプルを得るには船舶が使えず、沿岸からアプローチする場合には高速な離岸流や高波によって海難事故を誘発する危険がある。さらに海産物は種類が多く、すべてについて測定することは困難である。このような場合にも、PNNL の行ったシミュレーションは有効であると考えられる。

また福島沿岸での汚染された堆積物は主に波浪の影響で輸送されることが JAEA の 初期調査で予測されている。沿岸付近では砕波による輸送が最も大きいと思われ、これは直接的に流体計算を行うのが困難な現象である為、実測、実験等を正確に再現する経験的なモデルを採用する必要がある。こうした問題に関し、実測による安全評価をメインとしつつ、シミュレー

ションによって「いつ、どこで、なにを、どれだけ」測定すればよいかの指針を得ることができれば、限られた測定リソースを最大限に活用することが可能となる。シミュレーションがそのような役割を担うことは非常に有効である。

これについても水理学の知識と経験および実験・観測による検証が必要であるため、今後は FLESCOT および他の流体コードで試計算を行いつつ、大規模並列化も念頭に置いて本計算に用いるコードの選定を行っていくことで PNNL と JAEA は同意した。

5.0. シミュレーションコードの並立化と可視化

FLESCOT はコンピューターのメモリ量が少ない時期に開発されたコードであり、メモリ量の削減のため現在ではあまり用いられていない方法が用いられている。その為、並列化を実施するにはこの部分の改良が必要となる。

FLESCOT は開発時に可視化機能をつけていたが、現在の計算機環境では可視化部分を修正しなければならない。そのため、可視化ツールを開発するには、システム計算科学センター高度計計算機技術開発室の可視化チームと連携して開発を進めていきたい。

PNNL 内で分子的研究を行っている環境分子科学研究所は分子研究部門と最先端の計算機部門がある。計算機部門の研究チームとの打ち合わせにおいて、化学反应用等に使用されている並列シミュレーションコードの説明があった。図23は環境分子科学研究所で使われているChinook Supercomputerを示している。

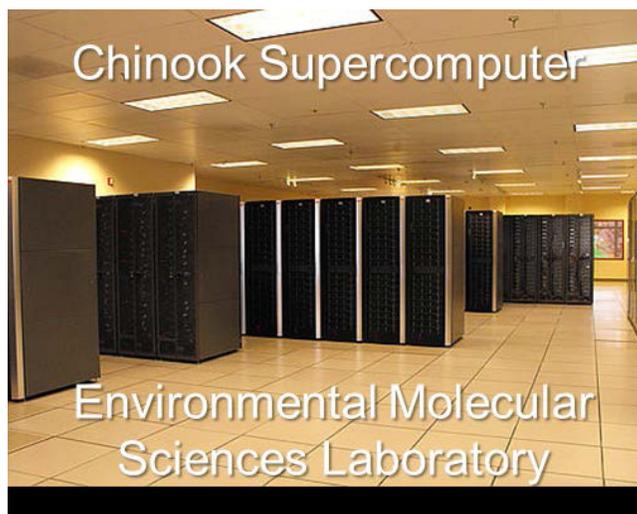


図23. PNNL 環境分子科学研究所の Chinook Supercomputer

環境分子科学研究所の Eric Bylaska から、PNNL が開発した Global Array Toolkits (GAT) と呼ばれるユーザが通信命令を直接記載しなくても並列計算可能なツールの説明があった。このツールは実際に PNNL の計算機で有効に動作することであった。このツールを利用した場合と、並列計算の際に一般に利用されている通信命令である MPI を利用した際の通信性能に関して、ネットワークの構造や通信するデータの構造に依存するが、規則的に配置されたデータを通信する場合は、GAT と MPI は性能に差はないとの説明があった。PNNL は JAEA に GAT のウェブページアドレスを提供した。JAEA は GAT の機能や有効性を原子力機構のスーパーコンピュータ等で調査し、FLESCOT 等の並列化に利用できる可能性を確認することの発言が JAEA からあった。

FLESCOT を基に並列化を行うか、それとも（大規模な並列化に適した）他の沿岸のシミュレーションコードに FLESCOT の機能を組み込むかの選択をする必要があるとの意見を出した。PNNL は過去に TEMPEST-FLESCOT を並列化する試みをした事があるが、現在の様な色々な並列化のプログラムがまだ開発されていなかった時期であった事もあるが、小規模な並列化にとど

まった経験がある。また、TEMPEST の共同開発者である Loren Eyerl 氏からは、後者の選択肢が有望であるとのコメントがあった。PNNL は現在 JAEA が使っている 3 次元の流体コード、ROMS を大量(数万オーダー)のコンピューターコアを使って、その並列化の有効性を確かめることを推薦した。他のシミュレーションコードの調査も行うことも含めて、どちらの方法で並列化を進めるかの指針を定める事がのぞましい。

PNNL は数万のコンピューターコアを有効に使える流体コード、ParaFlow と地下水コード eSTOMP を開発した。図 2 4 に ParaFlow の 6 5, 5 3 6 までのコンピューターコアを使用した際の並列化性能を示した。貯蔵タンク内でのポンプによる廃棄物混合の ParaFlow によるシミュレーションの例を図 2 5 に示す。

eSTOMP の 1 6, 3 8 4 プロセッサまでの並列化性能を図 2 6 に示す。この図もこのコードの並列化が優れていることを示している。

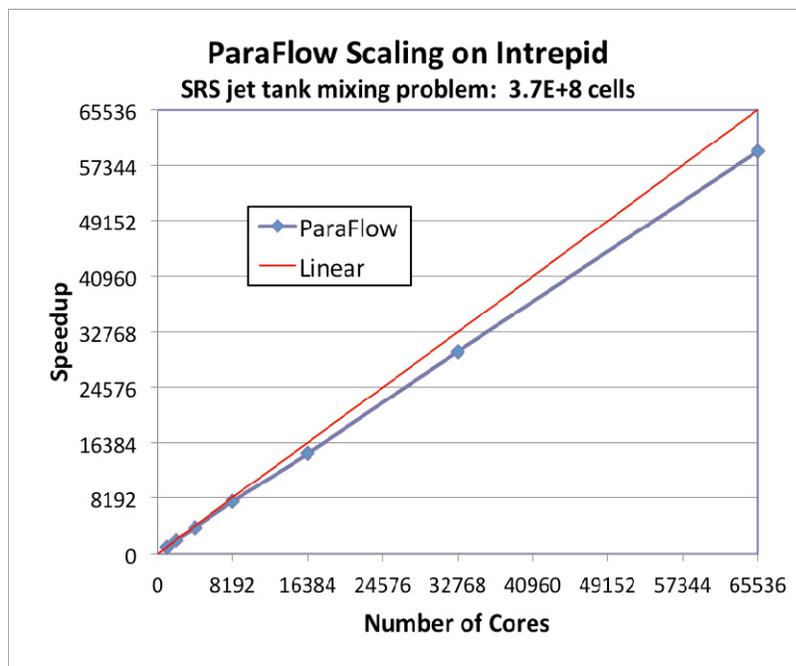


図 2 4. ParaFlow 流体コードの並列化性能

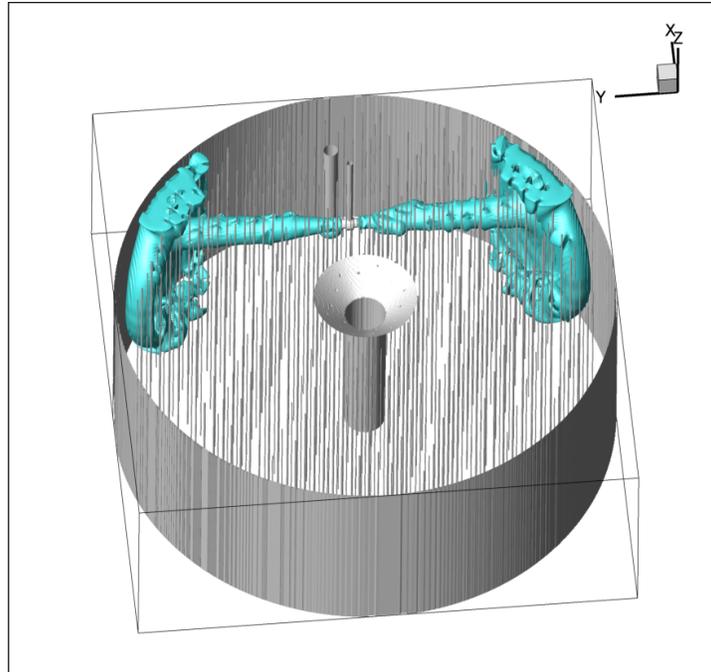


図 2 5 . ParaFlow による貯蔵タンク内でのポンプによる廃棄物混合

化学変化も含んでいる地下水シミュレーションコード eSTOMP はシリアルコード STOMP を並列化したものである。このコードは図 2 6 に示したように、1 6 , 3 8 4 まで並列化性能が優れていることが実証されている。図 2 7 にハンフォードの subsurface の流れのシミュレーション結果を示す。

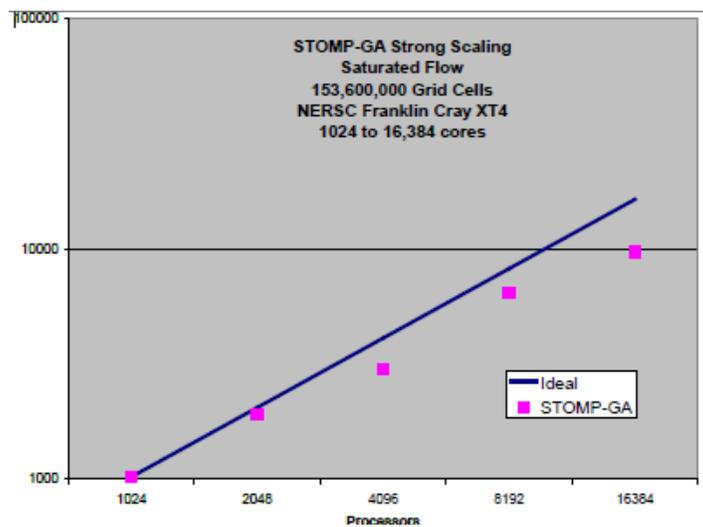


図 2 6 . eSTOMP の並列化性能テスト

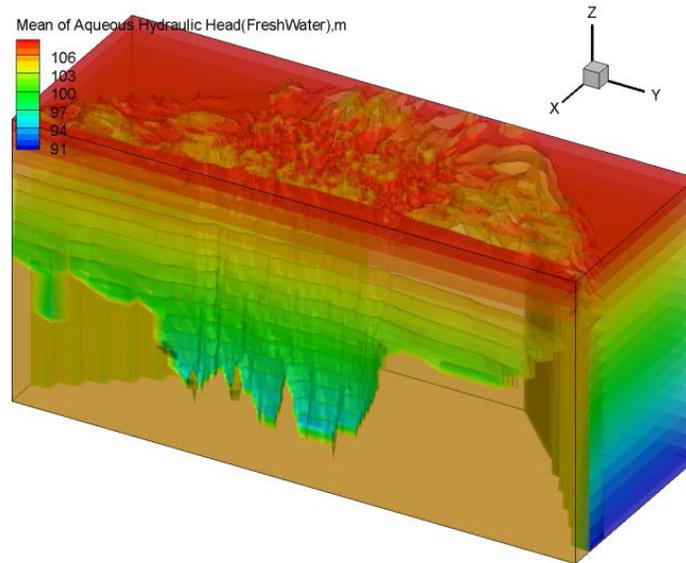


図 2 7 . ハンフォードの subsurface の流れのシミュレーション

また、PNNL では TEMPEST に化学反応を陽に扱う機能を追加し、流体計算と同時に化学反応の記述を行う ARIEL と呼ばれる拡張コードも開発している。この ARIEL では、化学反応記述部分の計算時間が全体の約 90% を占めているが、この化学反応計算はセルごとに実行できるコード構造になっている。このことから、ARIEL を並列化する際には、この部分の並列化が最も重要になると考えられるが、その構造から高い並列化性能を期待できる。

6.0. セシウムの粘土鉱物との吸着と脱着

6. 1. 巨視的観点

セシウムは福島の粘土土壌、特にマイカ系粘土に強く吸着されるので、その機構を研究することはセシウム環境中の移行を予測する上に大変重要である。PNNL は土壌内 Cs の脱着メカニズムについて詳しく発表した。特に図 2 8 に示されるように、Cs は粘土の frayed edge に強く吸着され、水で大量に脱着させる事が殆ど不可能である。このことより、土壌に吸着したセシウムは雨水、雪解け水、河川などの水にはほとんど脱離してこないと考えられる。セシウムは端非水和性、内部球状表面化合物の端に吸着しやすい。土壌に吸着した Cs は海水ではカリウムイオンと競合して脱着する傾向がある。ハドソン川におけるセシウム挙動のシミュレーションの例で述べたように、セシウムはカリウムを大量に含んだ海水中ではかなりの量が脱離する(図 1 6 参照)。また、セシウムが土壌に吸着して時間が経過していると外れにくくなる傾向があり、長い時間をかけて出てくることも考えられるとのことであった。そのためすべてのセシウムが同時に脱着するとは限らないことも、動態予測のための重要な事実である。

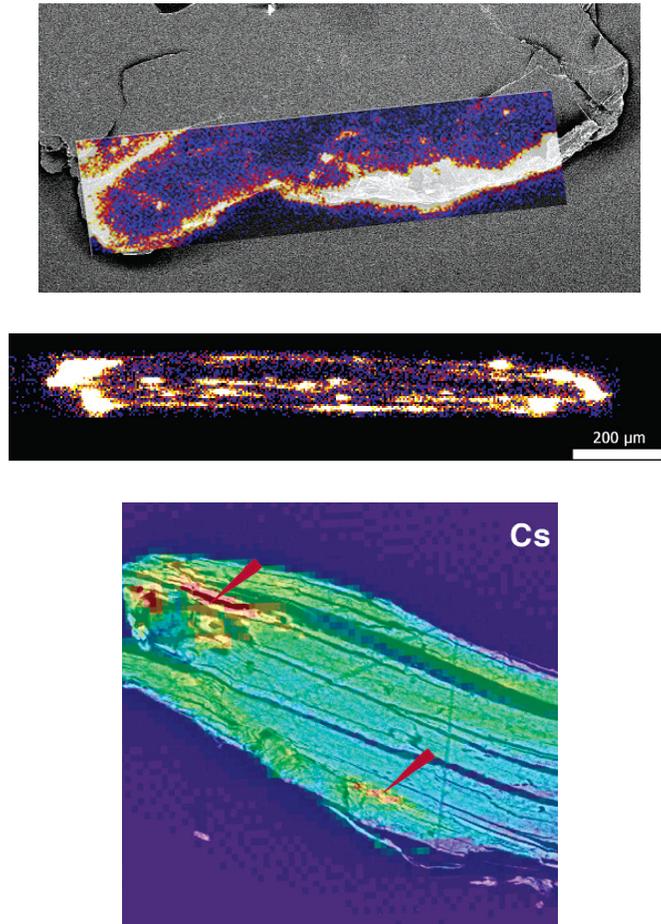


図 2 8. セシウムの土壌吸着の観測結果

JAEA から、福島いくつかの土壌サンプルを採取して実施した「土壌構成成分、鉱物 組成分析、及び土壌基本特性と Cs の吸着脱着試験結果」の説明を受けた。

- PNNL の土壌挙動の専門家よりこれらの測定を今後も展開していくことは重要で、PNNL 施設見学を通して実験体制や実験内容を JAEA に述べ、PNNL でこれまでに蓄積してきた技能提供がすぐにでも可能で協力できると説明した。現在 JAEA で調査している土壌の調査結果がある程度明らかになった段階で共同分析内容について議論を進める事が有意義であると考えられる。
- PNNL の抽出溶液でセシウムをハンフォードの土壌から約 85%脱着させた例を説明した。これは PNNL のノウハウである。また、電極を使って土壌から（アンモニア溶液に）セシウムを取り出す実験も進めているが（特に粘土から取れやすい）、現地で適用する際にはあらかじめ篩にかけて粘土成分を分離してから適用すると効果があるのではないかと、議論を重ねた。ただし、微量 Cs 吸着土壌に対する効果は検証が必要とのことである。
- 土壌サンプルを PNNL に送ることの提案を今後検討したい旨 JAEA が PNNL に伝えた。

6. 2. 微視的観点

JAEA から福島土壌とのセシウムの吸着、脱着の報告があった。その後 PNNL の Drs. Andrew Felmy, Anne Chaka, Sebastien Kerisit, Eric Bylaska から PNNL の化学現象の molecular modeling の発表が行われた：

- Continuum thermodynamics and linkage to reactive transport
- Quantum mechanics ab initio Thermodynamics
- Molecular Dynamics
- High performance computing, ab initio molecular dynamics/ quantum mechanics。

図 2 9 は molecular modeling の一例で、モントモリオナイト粘土とセシウム、ナトリウム、カリウム等との反応をシミュレーションである。化学実験と molecular modeling を組み合わせることで現象を解析することが出来る。一般に、実験は何が起こったかを示し、molecular modeling は如何にその現象が起こったかを解明する。又分子サイズから環境のサイズに拡大するには図 3 0 に示す様な multiscale simulation approach が必要である。

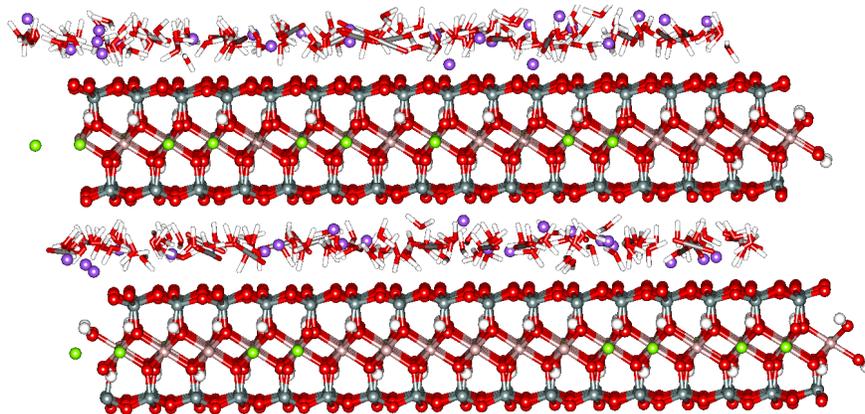


図 2 9. Molecular Dynamics Simulation of Sodium Montmorillonite

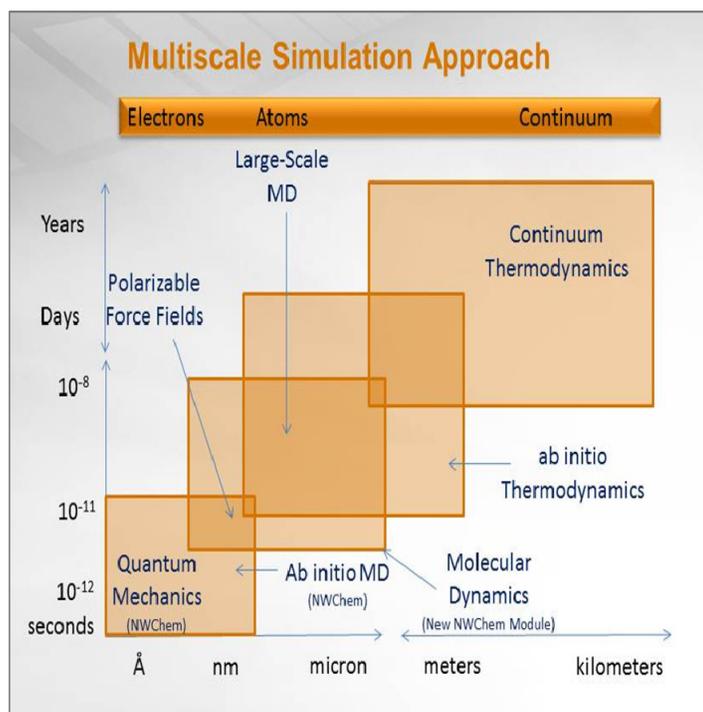


図 30. Scale-up の為の Multiscale Simulation Approach

- JAEA のシステム計算科学センターでは次の段階の計算を進めており、PNNL と共同で研究を遂行させたい旨を伝え、PNNL/EMSL も共同研究を希望していることを確認した。
- JAEA 側の研究内容と PNNL/EMSL 側の研究内容はお互いに弱点を補い合う関係にあり、双方の技術・知見を合わせれば、原子分子レベルにおける土壌への放射性セシウム吸着挙動に関してより深い理解が得られると期待できる。
- JAEA で進めている調査研究を強化する研究項目として、PNNL は以下のような具体的な共同研究項目を提案した：
 - モデルの改良による、現在 JAEA で行われている分子計算の高精度化
 - セシウムと競合する海水中のイオンを考慮し、より現実的なモデルの構築と解析
 - PNNL/EMSL で開発された、新しい自由エネルギー評価法、分子動力学法、QM/MM（量子力学計算と分子動力学計算の組合せ）法及び AIMD/MM（第一原理分子動力学計算と分子動力学計算の組合せ）法などの適用によるシミュレーションのスケールアップ。

7.0. 河川流域 (Watershed) DHSVM と HEM コード

2011年の福島原発事故によって ^{131}I , ^{134}Cs と ^{137}Cs が空中に放出され、現在森林、農業地や町等がセシウムによって汚染されている。これらの環境中のセシウムの幾らかは時がたつにつれて、雨水、雪解け水などで流される地表面の土壌によって、河川そして海へと移行すると考えられる。JAEA はそれらの土壌浸食量を Universal Soil Loss Equation (USLE) で計算した。USLE はアメリカで広く使われている式である。しかし、USLE は年間の土壌浸食量を計算する方法であり、台風や梅雨時期の土壌浸食量を評価するのは困難である。又 USLE 地表面を流れる水 (runoff) は計算しない。

PNNL の研究者、Mark Wigmosta 博士は非定常、3次元のエネルギーと水の質量保存則に基づいた Distributed Soil Hydrology Vegetation Model (DHSVM) を開発した。DHSVM は河川流域の runoff と土壌浸食をシミュレーションする (図3 1 参照)。このモデルは kinematic wave equations を使った Hillslope Erosion Model (HEM) とつなぎ合わせることで河川流域の rill erosion も入れて、土壌浸食量が計算される。それらのモデルで計算したワシントン州 Yakima Training Center 内での土壌浸食量を図3 2 に示す。

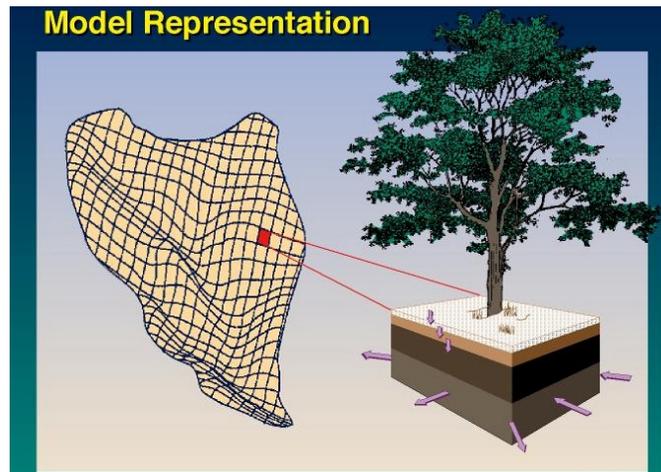


図3 1. Distributed Soil Hydrology Vegetation Model の Representation

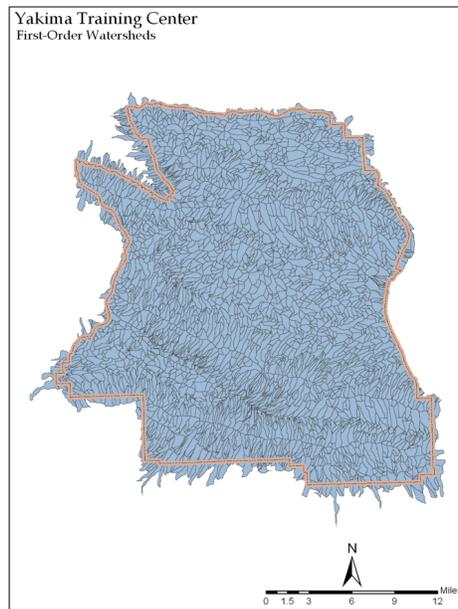


図32. DHSVM と HEM による Yakima Training Center 内での土壌浸食量

8.0. ハンフォードサイトの環境評価と除染

8.1. ハンフォードサイトの汚染と除染

米国ワシントン州東部に、図 3 3 に示したエネルギー省のハンフォードサイトがある。ここに現在では運転していない 9 基の原子炉と再処理工場があり、現在は、解体 → 汚染物除去 → 処理 → 貯蔵 → 処分等、施設のデコミと汚染された環境の除染作業が行われており、後数十年に渡ってこの作業は行われる。

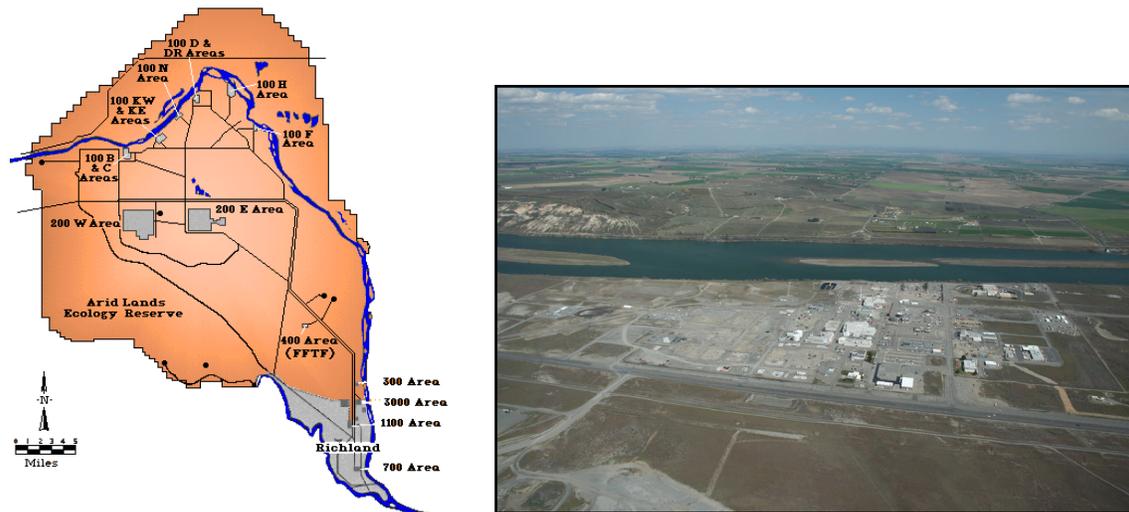


図 3 3. ワシントン州東部にあるエネルギー省のハンフォードサイト

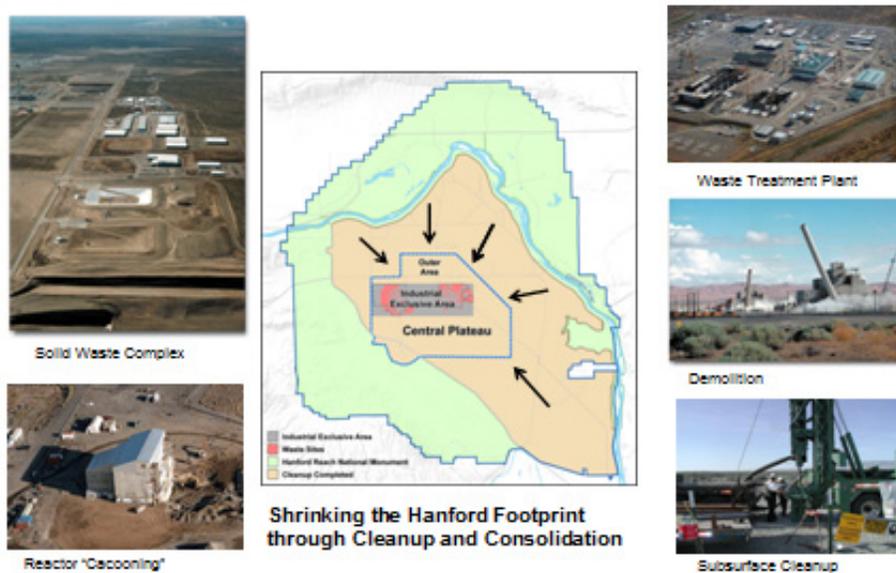


図 3 4. ハンフォードサイトの環境除染戦略

8. 2. ハンフォードサイトのモニタリング

図35に示したように、ハンフォードサイトは種々の汚染源によって地下水が汚染されており、それらがコロンビア川に向かって流れている。コロンビア川をハンフォードサイトからの放射性物質、化学毒性物質から守るため、地下水、大気、土壌、食物、動物、牛乳などについて様々なモニタリングが行われている。地下水のモニタリングの例を図36に示した。

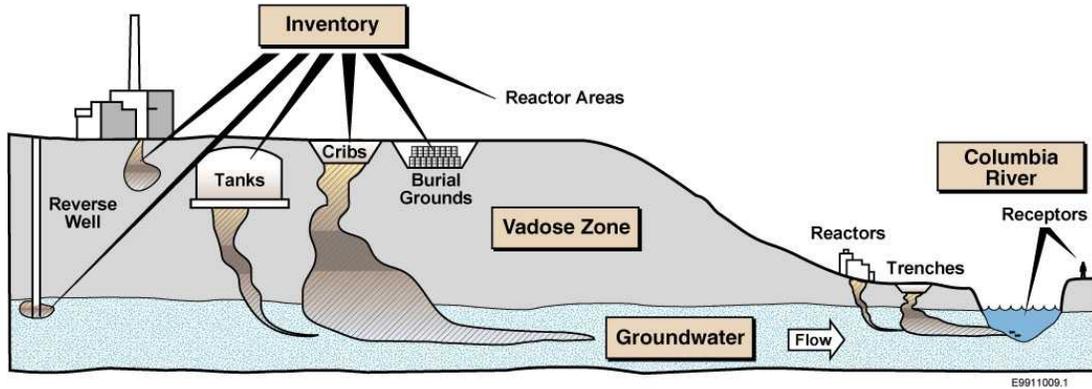


図35. ハンフォードサイトの地下水汚染源

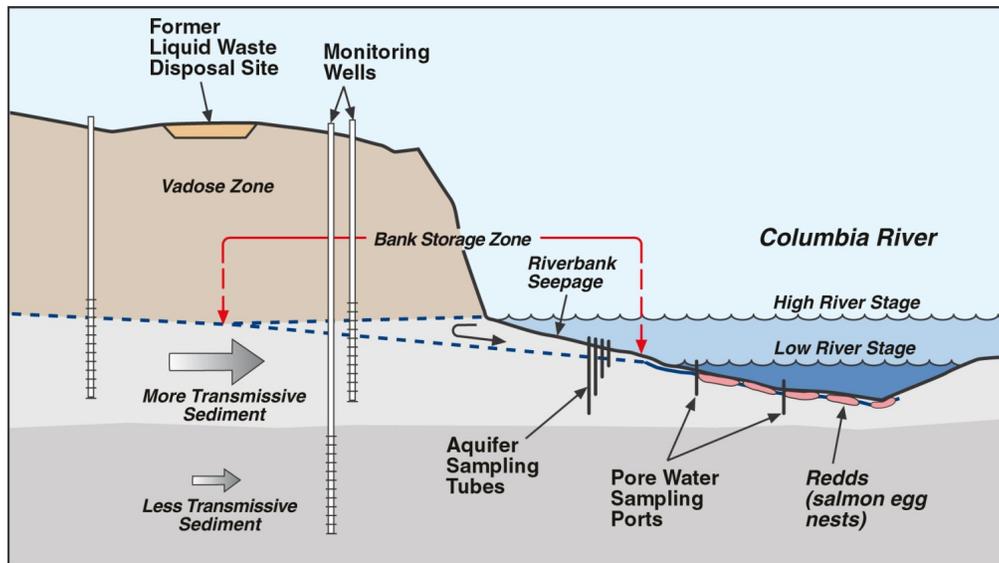


図36. ハンフォードサイトの地下水モニタリング

9. 0. ハンフォードサイトの環境除染

ハンフォードサイトでは汚染された土壌を取り除く作業や地下水の除染など様々な除染作業が行われている。その例を図37と図38で示す。



図37. ハンフォードの汚染土壌の除去

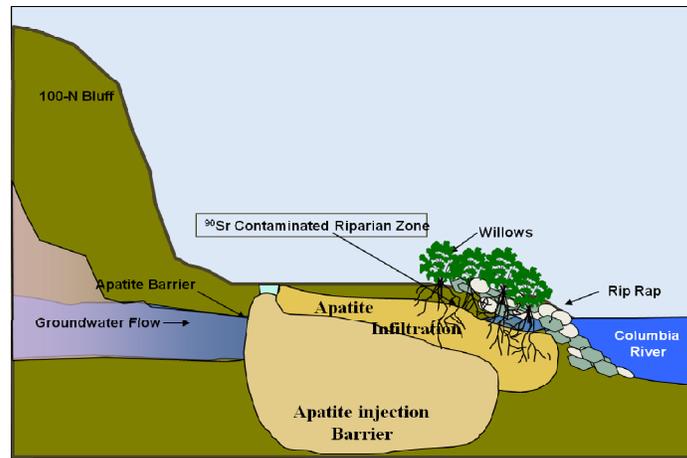


図38. Apatite による地下水中の ⁹⁰Sr の除去

10.0 使用済み燃料貯蔵・運送・処分キャスク評価

PNNL が開発した state-of-art COBRA-SFS, FRAPCON, FRAPTRAN, と DATING コード等を使って Nuclear Regulatory Commission (NRC) とエネルギー省の為に原子炉、燃料デザイン、使用済み燃料貯蔵・運送・処分キャスクの運転性能の評価をしている。図 39 は運送中に燃料が 9 メートル落ちた場合の燃料の状態をシミュレーションしたものである。破損した核燃料を取り出す際の解析は図 40 に示す。又 horizontal dry storage system の熱分布のシミュレーションを図 41 に示す。

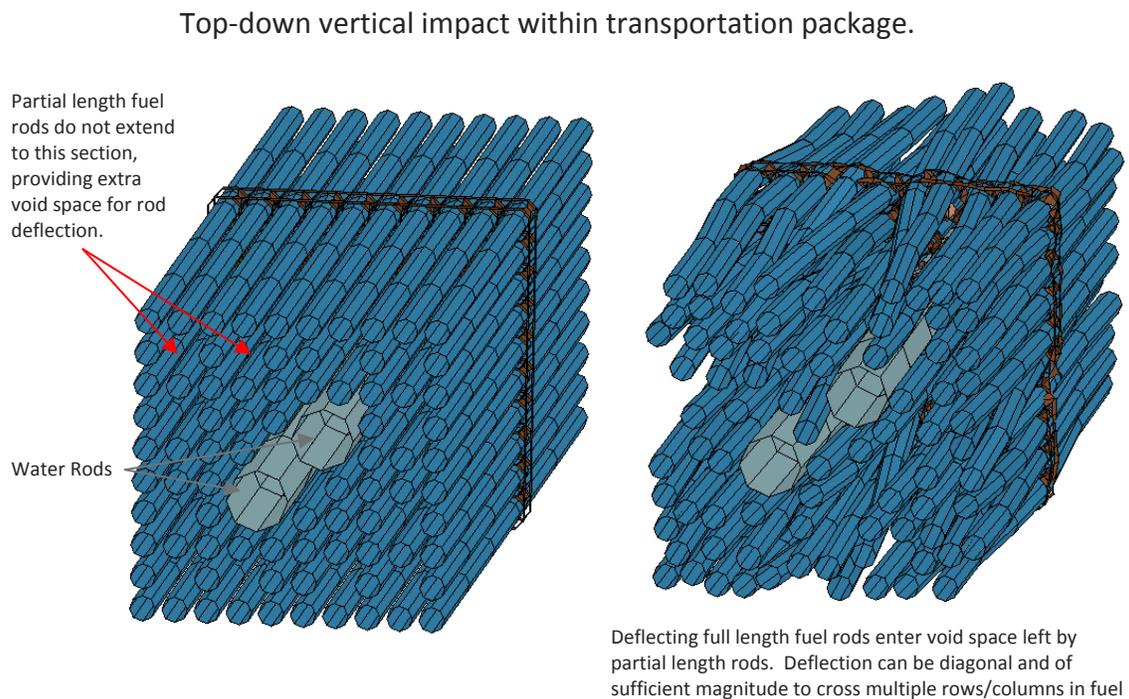


図 39. 核燃料の落下による損傷のシミュレーション

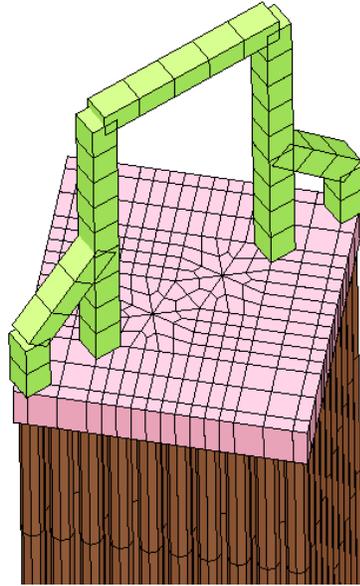


図 4 0 . 核燃料の Retrieval and Lifting Analysis

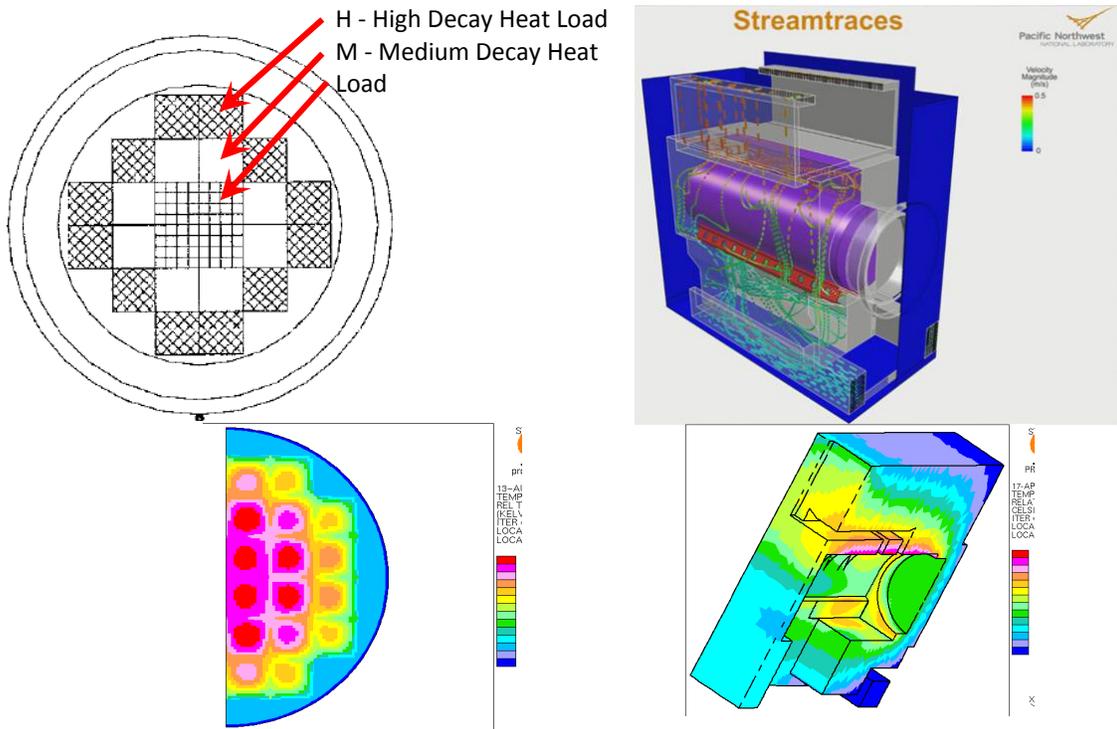


図 4 1 . Horizontal Dry Storage System の熱分布のシミュレーション

11. サイトと PNNL の施設見学

11. 1. ハンフォード・サイト

- ・ ハンフォードはマンハッタン計画でプルトニウムの精製が行われた製造所で、1988 年に閉鎖されたものの、米国で最大級の核廃棄物処理の問題を残しており、長期間にわたり高額な費用を投入して環境修復・除染作業が進められている。

敷地内を 80km にわたってコロンビア川が流れており（図 3 3 参照）、約 600km 下流で太平洋に流れ込む。その川岸には原子炉 9 基（エリア 100 と呼ばれる）、中央部には核燃料の再処理工場群（エリア 200 と呼ばれる）があった。原子炉施設で使用される冷却水はコロンビア川から汲み上げられ、1971 年まではほとんど除染されないまま再び川に廃棄されていた。

- ・ サイトにはこれらの原子炉や核燃料再処理工場から生じた大量の高レベル放射性物質、TRU 廃棄物、低レベル放射性廃棄物や化学廃棄物が蓄積し、土壌や地下水、コロンビア川を汚染しつつあった。再処理施設だけでも 7×10^{20} Bq、22 万 m^3 の個体並びに液体放射性廃棄物を生じ、それらは 177 の地下貯蔵タンク（多くのタンクの容積は 1 基約 $4000m^3$ ）に保存されているが、いくつかのタンクでは錆で底に穴があき、液体放射性廃棄物が土壌と地下水に流出し、汚染された地下水がコロンビア川に向かっている。
- ・ このような汚染に対処するため、上記した様にハンフォードでは様々な除染方法が応用されている。その一つは「ポンプと水処理（pump and treat）」という方法で、これは汚染した地下水をポンプでくみ上げ、汚染物を除去したのち、除染された地下水を別の場所の地下に注入する方法である。この方法は水溶性の高い放射性物質の除染には効果があるが、土壌への吸着性の高いセシウム等には有効ではない。しかしながら、汚染地下水の流れの方向と速度を変えて、汚染された地下水がコロンビア川に流れないようにするには有効である。
- ・ バスによるサイト・ツアーではまず、エリア 100 を訪れ、原子炉周辺を見学した。付属建屋はほとんど撤去され、原子炉についても建物をカクーン（cacoon）と呼ばれる覆いで保護された状態となっており、75 年の減衰を待って解体する予定である。
- ・ その後エリア 200 を訪れ、再処理工場群の跡地を見学した。地下貯蔵タンクが埋まっている場所も通過した。また現在建設中の世界最大のガラス固化処理施設を望んだ。ハンフォードでは廃棄物管理施設をエリア 200 に統合しながら規模を徐々に縮小する形で廃止措置を進めている（図 3 4 参照）。
- ・ ハンフォードの除染に関して総合的な情報を見る事ができる PHOENIX というインターネット（Web）ベースのシステムがある（URL: <http://phoenix.pnnl.gov/>）。このシステムは測定量などがリアルタイムに反映されるようになっており、さらに、空間線量率の計算なども可能とのこと。

11. 2. 環境分子科学研究所 (EMSL: Environmental Molecular Science Laboratory)

- ・ 本研究所では JAEA は各種実験室や研究室を見学した。PNNL のグループと他の機関（国立研究所、大学、企業）が長年かけて作った計算化学の総合プログラム NWChem の解説があった。また、ヒューレッド・パッカード社が設置した 2,140 万ドルのチヌーク (Chinook) スーパーコンピュータについては、カバーを開いて、ケーブル類の敷設状況、空冷状況について見学した（図 2-3 参照）。チヌークでは NWChem を作動させ 分子間化学反応や細菌内部構造等のシミュレーションを行っている。本スーパーコンピュータは半年後に次世代のものに更新される予定である。

11. 3. 放射化学処理研究所 (RPL: Radiochemical Processing Laboratory)

- ・ 本研究所は原子炉を持たない 1960 年に建設された放射性物質研究施設で、改築しながら放射化学、放射線測定技術、次世代燃料、熱物性の技術開発を行っている。ここでは最近導入したホットイン前の放射性物質取扱遮蔽セルを視察した。4 基全体で 13 億円かかったが、それでも低コストである。これらは、福島での各種分析等作業に適した遮蔽セルであると考えられる。

11. 4. 生命科学研究所 (Life Sciences Laboratory Building 331)

- ・ 本施設では環境科学、バイオ技術の研究開発を行っている。ハンフォードの浄化に関わる各種実験もこの施設で行われている。見学では各種実験室に入り、ハンフォードで採取した土壌サンプルを用いた放射性物質移行確認試験（ウランの土壌内移行試験）、放射性物質分離実験（カリウムを入れた電解脱離カラム実験）の作業状況を見学した。

12.0. 主な PNNL 研究者参加メンバーによる解説、会談

Michael Kluse, Laboratory Director

- 日本のため JAEA のために協力できることは可能な限り行う所存である。
- PNNL は 1965 年に設立され、大学及び産業界と連携して様々な科学的工学的な技能を活用し現在はハンフォード施設全体の浄化のための解決策を開発してきている。初期にはハンフォード・サイトの作業員の健康と安全を確保する上で非常に重要な役割を果たしてきたが、その後 1990 年代からは上記のように環境問題に重点を置き、現在では国家安全保障にも力を入れている。
- 福島の課題も困難であるがハンフォードもまだまだ課題は山積しており、日本と協力して研究開発を進めていくことは両国にとって有益であろう。

Jud Virden, Associate Laboratory Director, Energy & Environment Directorate

- 福島の回復に関しては PNNL として協力を惜しまない。
- かなり前だが放射性セシウムの除去法として、電極を使った実験で非放射性 Cs を混在させて放射性セシウムと競合させることにより放射性セシウムを除去した経験がある。
- 環境分子科学研究所には人材、機材ともに一級のものがある、協力してやると有効である。
- 地表面を通じての放射性物質の移行挙動の解明は大きなテーマである。PNNL では地下水によって運ばれている放射性物質の挙動予測についても多くの知見を有しており、協力して推進していくことが重要である。

Wayne L. Johnson, Director, Earth Systems Science Division

- 250 人の地球・地質学者が研究を行っている。日本の対応は我々の部で対応している。2011 年 11 月に日本を訪れ鈴木理事長と話をした。福島もそうであるが、ハンフォードも難しい課題を有している。施設の廃止措置は進んでいるが、廃棄物の処理、土壌の除染はこれからである。大規模な廃棄物処理・処分に関わる施設が建設中である。遠隔操作をするにしても防護具を身につけて行う場合がある。

大西康夫 Yasuo Onishi, Chief Scientist

大西博士は TODAM FLESCOT, FETRA と ARIEL コードの主開発者である。大西博士はこの JAEA のプロジェクトのプロジェクトマネージャーで、同時にプロジェクトの Principle Investigator である。大西博士の元で環境動態研究に関連する解析手法の専門家と打ち合わせを行うことを設定し、さまざまな議論を通して今後の福島の環境動態研究で必要と考えられる研究開発手法の全体像を把握できるようにした。特に 1 次元河川シミュレーションコード TODAM、2 次元河川・河口・沿岸域シミュレーションコード FETRA 及び 3 次元河口・沿岸・海洋域シミュレーションコード FLESCOT (TEMPEST) については 計算原理及び実施例、並びに具体的計算方法を JAEA に詳細に説明した。

Andrew Felmy, Laboratory Fellow

- 熱物性が専門で、33 年間 PNNL で働いた。過去には動燃と仕事をしたこともあり、東海には何回か行ったことがある。現在は分子モデルのシミュレーションに最も力を入れている。EMSL のメンバーはきっと JAEA の良き共同研究者となるだろう。

Steve Yabusaki, Hydrology Technical Group

地層内の流れと化学的・生物学的多要素反応系の移送モデルの研究をしている。大規模な並列計算によりプロセスをより詳細かつクリアに追跡できるようになってきた。放射性物質貯蔵タンクの漏れが立体的に地層内に流れていく過程や金属を還元するバクテリアの増殖過程等のシミュレーションを実施した。ウランで汚染された土壌にアセテートを入れるとバクテリアが増えるが、 $U^{6+} \rightarrow U^{4+}$ に還元する。 U^{4+} は動きにくいいため、汚染拡散を阻止できる。

Loren Eyler, Consultant (元 PNNL 研究者)

- TEMPEST の主開発者である。最初は FBR の研究でナトリウムの流れを計算していた。1981 に FBR 開発がストップしたことにより、いろいろな流体モデルの計算を行うようになった。turbulence 計算は $k \cdot \epsilon$ モデルを基本にしており、パーフェクトではないが、現象の再現性に優れている。非ニュートン流体とジュール熱によるガラスの流動解析も TEMPEST を拡張する事で計算することができた。開発のコンセプトは低コストですぐに問題を解けるようにすることである。また安定性も重要である。市販の流体コード等も一見収束しているような結果を出す、いつも正しい答えを出しているとは限らない。自分でコードを持ち、コードの中身を熟考することが重要。

S. Thomas Yokuta, Fluid & Computational Engineering Group

- PNNL に求められている流体の数値計算能力としては精度の高い計算結果を出すことではなく、問題解決方としての感覚からその問題を解決するのに必要な精度をもつエスティメートを迅速に算出することである。最初はこんな単純な式でいいのかと思ったが、結果的には現象の主要なメカニズムをシミュレーションしていれば、そのような単純なものであるがゆえに応用範囲が広い。実際 TEMPEST では衝撃波以外の問題は、ほとんど解ける。

David Rector, Fluid & Computational Engineering Group

- ParaFlow を開発した。本コードは格子ボルツマン法を基本としているが通常の分布関数を用いず、効果的に並列化できるよう工夫したコードである。
(Semi-implicit lattice method)。マルチフェーズのプロセスをシミュレートできる。放射性物質貯蔵タンクのスラッジ計算に利用した。大規模な計算に適している。

Harold E. Adkins, Fluid & Computational Engineering Group

- 全米の使用済み燃料の再評価をアメリカ政府の元で一手に引き受けている。現在計算をし直しているところである。それぞれ内容物の異なる使用済み燃料の最適な配置方法や使用済み燃料運時に落下した場合のダメージ計算等も行っている。

Dawn M. Wellman, Environmental Science

ハンフォード・サイト内には土壌に直接廃棄された Cs、Sr、Tc、Am、U、Pu は累積でそれぞれ 75,000Ci、38,000Ci、600Ci、28,700Ci、270Ci、52,000Ci あり、放射性物質貯蔵タンクから漏れたセシウムとストロンチウムは 150,000Ci、14,000Ci ある。また、硝酸塩と亜硝酸塩が 98,000 ton も流れ出ているのも問題である。核種、土壌毎にいろいろな試験を進めているが、確立された手段は少なく課題が多い。ハンフォード全体で 4000 以上の土壌サンプリングポイントがあり、地下を流れる各種廃液の移動状態を監視している。

13. 0. 結論と今後の JAEA と PNNL の協力

13. 1. 総括

PNNL の各種解析コードの開発者、解析担当者が JAEA と直接議論することにより、研究開発の背後に隠れたポイント、計算効率化・収束性のための工夫など、直接顔を会わせて話し合わなければ伝えられない知見・情報を JAEA に提供できた。例えば、流体数値計算コードでは気・液界面等の境界面の精密なモデル化を犠牲にし、流れの深さは時間的、場所的には変化するが、計算格子を固定したまま汎用性のある計算を行えるよう開発したこと、流体の計算と浮遊砂の計算をあえて別々に実施し計算に不具合が生じた場合の問題修復工程をミニマムにする工夫などが挙げられる。加えて、現段階での研究開発の限界や改善すべきポイント等（過去に FLESCOT の並列化を試みたがうまくいかなかったこと）、今後共同で作業・研究を進めるための大きなヒントを得たことも JAEA に重要な収穫であったと思われる。そして、現実の環境や物理現象に密着した各種モデルの表現法、実験で決められないパラメータの代替決定法についても JAEA に知見を提供した。いずれも福島調査・研究に直結する重要なポイントであり、JAEA の今後の作業に適宜反映出来ると思われる。

さらにセシウム土壌脱着研究統括者からは福島土壌サンプルのセシウム吸脱着試験の準備が整っていると JAEA に述べた。また、分子原子シミュレーションの研究者やスーパーコンピュータの専門家は JAEA とセシウムの新たな分子挙動計算法、計算コードの並列化等について議論を行い、今後の共同研究内容を整理した。

13. 2. 今後の JAEA と PNNL の研究協力

- 1 次元河川シミュレーション (TODAM) : 福島のいくつかの河川の情報をインプット・データとして計算を進めていく。CHARIMA コードに福島の環境パラメータを入力する必要があり、必要情報を整理後 CHARIMA コードで川の流速の計算を行う。USLE に基づく土壌流亡の計算結果を TODAM のインプット・データとした計算も行う。
- 2 次元河川・河口・沿岸域シミュレーション (FETRA) : FETRA は JAEA 東海の再処理工場の海岸線付近での波浪 (wave breaking to littoral transport) の影響も入れて堆積物輸送のシミュレーションが行われた実績を持つシミュレーションコードである。iRIC (有限差分法) を用いた 2 次元河川シミュレーションを JAEA で進め、その結果を FETRA (有限要素法) に入れ別途堆積物輸送を計算できるかの検討を進める。オープンコードの 2 次元有限要素法、RMA-2 コードと FETRA を組み合わせたバージョンでの計算についても検討を進める。チェルノブイリの環境除染評価で RMA-2 と FETRA は過去に組み合わせた経験もある。
- 3 次元河口・沿岸域シミュレーション (FLESCOT) : JAEA は既に導入している 3 次元流体計算コード ROMS で試計算を進めるとともに、FLESCOT についても理解を深めながら 3 次元河口・沿岸域の計算に用いるコードの選定を行っていくこととした (波浪のデータを取り入れた FLESCOT あるいは別の流体コードによる土砂移動計算の検討)。JAEA は別途沿岸の波浪を再現するための地形データとコードを入手し、計算を進める。2013 年度前半、JAEA 研

研究者が PNNL に滞在し FLESCOT コードを実際に動かすことも検討し、他のコードとの比較を行い年度後半ごろに選定する。

- Watershed モデルによる土壌流亡計算：PNNL 研究者が開発した Watershed モデル DHSVM/HEM の福島環境への適用について JAEA は検討を進める。
- 並列化・可視化：JAEA は 3 次元河口・沿岸域の計算について、ROMS 等のコードが大規模(数万プロセッサ使用)に並列化が可能かどうかの調査を行い、その後 FLESCOT の機能を組み込むことができるかの検討を進める。なお並列化については 5 年後の計算機能力を見越しても利用できるものとなるよう検討を進める。JAEA は又 Global Array Toolkits の有効性を原子力機構のスーパーコンピュータ等で調査する。JAEA は可視化については PNNL が開発した PHOENIX の機能等を参考に検討を進める。
- 原子分子レベルシミュレーション：JAEA で進めている調査研究を強化する研究項目として、PNNL は下記の共同研究項目の提案をし、JAEA はその検討及び研究を進める：
 - モデルの改良による、JAEA の計算の高精度化
 - セシウムと競合する海水中のイオン、溶媒を含む、より現実的なモデルの構築と解析
 - PNNL/EMSL で開発された、新しい自由エネルギー評価法、分子動力学法、QM/MM (量子力学計算と分子動力学計算の組合せ) 法及び AIMD/MM (第一原理分子動力学計算と分子動力学計算の組合せ) 法などの適用によるシミュレーションのスケールアップ

なお、土壌サンプルを用いた粘土鉱物への Cs の吸脱着機構の解明については、PNNL の生命科学施設で実験態勢が整っていることから、現在 JAEA で進めている土壌等の調査結果がある程度纏まった段階で、JAEA は PNNL と共同作業内容について議論を深めることとした。微視的スケールと巨視的スケールの接合方法についても将来検討する。

14.0 References

International Atomic Energy Agency, 2001. "Generic Modes for Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment," Safety Series No. 19, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.

Onishi, Y., O.V. Voitsekhovich, and M.J. Zheleznyak, editors. 2007a. "Chernobyl - What Have We Learned? The Successes and Failures to Mitigate Water Contamination Over 20 years," Springer Publishers, Dordrecht, The Netherlands.

Onishi, Y., S.L. Kivva, M.J. Zheleznyak, and O.V. Voitsekhovich. 2007b. "Aquatic Assessment of the Chernobyl Nuclear Accident and Its Remediation," Journal of Environmental Engineering, American Society of Civil Engineers, Vol. 133, No. 11, pp. 1015 - 1023.

Onishi, Y., 2005. "Slurry Flows" In: *Multiphase Flow Handbook*, ed., C. Crowe, CRC Press, Boca Raton, Florida, pp. 13.119 -13.128.

Onishi, Y., 1994. "Contaminant Transport Models in Surface waters," Chapter 11, in: *Computer Modeling of Free Surface and Pressurized Flows*, pp.313-341, M.H., Chaudrey and L. W. Mays eds., NATO ASI Series E, Applied Sciences- Vol. 274, Klumer Academic Publisher, Dordrecht, The Netherlands.

Onishi, Y., H. C. Graber and D. S. Trent. 1993. "Preliminary Modeling of Wave-Enhanced Sediment and Contaminant Transport in New Bedford Harbor." In Book Series 42 of *Estuarine and Coastal Water Cohesive Sediment Transport*, pp. 541-557, A. J. Mehta ed., American Geophysical Union.

Onishi, Y., and D. S. Trent. 1992. "Turbulence Modeling for Deep Ocean Radionuclide." In *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, Volume 15, No. 9, pp. 1059-1071.