

モンテカルロ法による放射性核種地中移行の確率論的解析

Stochastic Analysis on Underground Migration of Radionuclides by Monte Carlo Method

(財) 電力中央研究所 正員 河 西 基

(株) 三菱総合研究所 井 上 幸 雄

1. はじめに

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物は、青森県下北地区への集中貯蔵の実現化に向けて大きく進展しているが、陸地処分の安全性が十分に確認された後には貯蔵から処分へ移行される見込みである。このため、陸地処分安全評価手法の確立が緊要な課題となっており、処分施設から漏出した放射性核種の地中移行挙動を予測評価することが必要である。従来、これらの問題に対しては移流拡散方程式を有限差分法あるいは有限要素法を用いて数値シミュレーションするEuler 的アプローチが主として適用されている¹⁾。しかし、対象とする核種の移行挙動は、現象が複雑であるとともに相当の長期にわたって予測評価する必要があるところから、このような Euler 的アプローチの適用に関しては困難な面も多々ある。

そこで、本研究においては、多孔媒体中での水分移動と核種移行挙動をLagrange 的にモデル化することにより数値解析上の誤差の累積を極力小さくして直接的にシミュレートする解析モデルの検討を行った。すなわち、水分移動モデルでは、土壌水分移動のメカニズムに注目し、保水状態の区分を考慮して表現がなされている。核種移行モデルでは、土壌への核種吸着に関する線型・非線型化学平衡論モデルおよび反応速度論モデルを選択して考慮することができ、また核種の放射壊変による減衰が考慮されている。いずれもモンテカルロ法 (MCM) による直接シミュレーション手法を用いている。本論文では、これらのシミュレーションモデルの内容を紹介するとともに、その適用性について検討した結果を述べる。

2. 土壌水分移動のLagrangeモデル (鉛直1次元)

本研究では、多孔媒体中の水分移動機構をモデル化するにあたり、多孔体の複雑な流路を流体素分が流下することによる分散現象としてとらえ、MCMを用いたLagrange 的アプローチによりシミュレートすることを試みる。ただし、竹内²⁾のような多孔媒体の空隙特性と流れ特性との微視的な議論等については今後の課題とし、ここではややマクロ的な観点から土壌水分移動メカニズムに着目してモデル化を行った。

2.1 モデルの基本構成

土壌中での保水状態と水分移動との関係が図-1に示すような概念にもとづいて定義されるとして、土壌水分移動メカニズムを以下のようにモデル化した。ただし、本論文においては圃場容水量以下の保水状態の領域は対象外とする。

i) 最小容水量 (圃場容水量) に相当する含水量 (θ) を θ_r と定義し、 $\theta \leq \theta_r$ の懸垂水帯領域では水粒子が移動しない。

ii) $\theta > \theta_r$ の重力水に相当する領域では水粒子が移動する。ただし、この中をさらに下降運動中の重力降下水 ($\theta > \theta_c$) と毛管水帯中に保持されている毛管重力水 ($\theta_c \geq \theta > \theta_r$) とに細分し、後者は脱水過程においてのみ移動し得るとする。

iii) 移動する水粒子においては、水分量を付与された粒子の位置がMCMにもとづいて式(1)のように与えられる。

〈水分移動〉

(毛管/蒸発散作用による移動) → 毛管流 → 重力降下水 → 飽和流

↑

シオレ含水量 最小容水量 (圃場容水量) 最大毛管容水量 飽和容水量

↓

〈保水状態〉	結合水	薄膜水	毛管水	毛管重力水	重力降下水
	懸垂水	自重水	自重水	自重水	自重水

図-1 土壌水分移動モデルの概念

$$X^{n+1} = X^n + W(\theta) \cdot \Delta t + \sqrt{24D(\theta) \cdot \Delta t} (0.5 - R(1)) \quad (1)$$

ここに、 $W(\theta)$: 移流パラメータ、 Δt : 時間ステップ、 $D(\theta)$: 構造的散逸と分子拡散を含む分散パラメータ、 $R(1)$: 0から1の一様乱数

Ⅳ) 一方、ステップⅠ)およびⅡ)において停滞する粒子については、

$$X^{n+1} = X^n \text{ とおく。}$$

Ⅴ) 全粒子の位置が決定された後、水分量 θ に換算する。前ステップ

までに決定された粒子フロントを起点にして、 θ を計算するために設

定された格子系(距離ステップ Δx)により、各 Δx 間における θ_i が式(2)で定義される。

$$\theta_i \equiv W_o \cdot N_i \quad (N_i: \text{区間 } X_{i-1} \sim X_i \text{ に存在する粒子数, } W_o: \text{粒子1個あたりの水分率}) \quad (2)$$

以上のような水粒子移動によるLagrange的シミュレーションの基本モデルを図-2に示しておく。

2.2 境界条件

ⅰ) ディリクレ条件: 境界セルにおいて θ_1 が既知として、式(2)より θ_1 に相当する粒子数 N_1 が保持されるように境界で供給される粒子数を各時間ステップで調節する。

ⅱ) ノイマン条件: 境界よりの浸透速度(降雨強度) R が既知として、 Δt 時間に境界セルに出入りする水分フラックスに相当する粒子数を供給する。

ⅲ) 内部境界(初期条件を含む): 飽和水帯、間隙水などに相当する適正数の粒子を配置する。

2.3 物理パラメータ

上述のモデルに必要な物理パラメータについては、本論文では次のような仮定にもとづくとする。

ⅰ) $W(\theta)$: 平均的な移流速度としてダルシー流速が与えられる。

ⅱ) $D(\theta)$: Euler的に記述されたKluteの水分拡散方程式の毛管引力に関する土壌水分拡散係数を用いる。

ⅲ) この他、 θ_r 、 θ_c については物性値(実験等により決定)として与えられる。

3 放射性核種地中移行のLagrangeモデル(3次元)

移流拡散現象のLagrange的シミュレーションについては比較的多くの研究例があるが、放射性核種の地中移行を対象としている報告例はさほど多くない。⁵⁾⁶⁾

本研究では、図-3に示すようなコントロール・ボリューム中の核種の収支を考慮し、移流拡散による土壌中での核種の移行をLagrange的に表現した濃度粒子モデルを以下のように構成した。

3.1 核種粒子の基本モデル

図-3に示す土壌セル*i*の中に含まれる核種(Q_i)は次の2種類

- ① 液相中に存在するもの (Q_s)
- ② 固相表面に吸着されているもの (Q_a)

からなり、 n 時刻ステップにおける対応する粒子数を N_i^n とすれば

$$Q_i^n = W_c \cdot N_i^n \quad (3), \quad Q_i^n = [Q_s^n + Q_a^n]_i \quad (4)$$

で定義される。ここに、 W_c : 核種粒子1個あたりに付与される核種量の重

み、 N_i^n : セル体積 ΔV_i に含まれる核種量に相当する粒子数

また、液相中に含まれる核種の濃度 C は次式で表わせられる。

$$C = Q_s / (\theta \cdot \Delta V) \quad (5)$$

一方、土壌への物質吸着モデルとしては、線型・非線型の化学的吸着平衡論モデルおよび吸着反応速度論モデルの合計4種類を対象問題に応じて選択して用いることとし、表-1にそれらのモデルをまとめておく。この

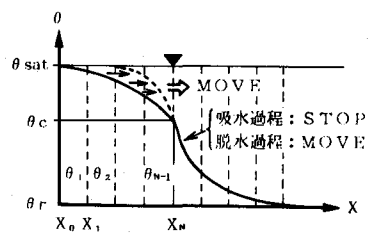


図-2 水粒子移動モデル

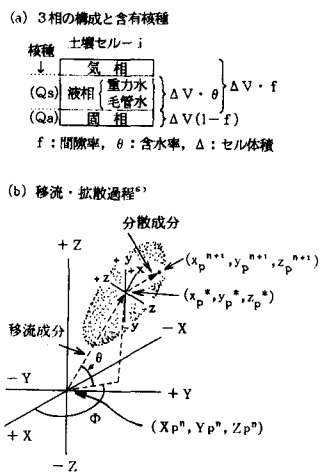


図-3 核種粒子モデル

ように、単位の土壌質量あたりの核種吸着量 (q) と核種濃度 (C) の関係が与えられたとすれば、土壌セル中の吸着量は次式で表わされる。

$$Q_a = (\text{固相質量}) \times q \\ = (1-f) \cdot \Delta V \cdot \rho \cdot q \quad (6)$$

ここに、 f : 間隙率, ρ : 土壌密度

また、液相中の核種量は次式で与えられる。

$$Q_s = Q - Q_a \quad (7)$$

この核種量は式 (3) で定義される濃度粒子数に比例するので、液相中および固相表面吸着の各粒子数を N_s および N_a とすると次の関係を得る。

$$N = N_s + N_a \quad (8), \quad N_s = Q_s / W_c \quad (9)$$

$$N_a = Q_a / W_c \quad (10)$$

上記の対応関係にもとづき、図-4 に示すような核種地中移行の Lagrange 的シミュレーションモデルのフローにしたがって、任意の時刻と場所における核種の液相中濃度 C および土壌吸着量 q を求める。フロー図で示される各ステップごとに本モデルのアルゴリズムの概要を以下に述べる。

i) 初期設定: セル- i の n ステップ時刻における液相中濃度 C_i^n (以下、 i, n 省略) より、式 (3) ~ (10) の関係を用いて各相の核種量に相当する粒子数を配分する。例えば、Henry 型の吸着等温式を適用できると仮定する場合、次式から求められる。

$$N_s = \frac{\theta}{\theta + (1-f) \cdot \rho \cdot K_d} N \quad (11), \quad N_a = \frac{(1-f) \cdot \rho \cdot K_d}{\theta + (1-f) \cdot \rho \cdot K_d} N \quad (12)$$

ここに、 K_d : 分配係数

ii) 移流分散過程: 時間ステップ Δt において、地下水の移流と分散によって移動する粒子の位置 Z は、MCM にもとづいて次のように表現される。

$$[\text{液相中粒子}] \quad Z_s^{n+1} = Z_s^n + W^n \cdot \Delta t + \sqrt{24 D \cdot \Delta t} (0.5 - R(1)) \quad (13)$$

$$[\text{土壌吸着粒子}] \quad Z_a^{n+1} = Z_a^n \quad (14)$$

これらの過程を通じて、各セルに存在する全粒子について Δt 後の各粒子の位置が定まり、新たに各セルに含まれる粒子数が求まる ($N_s^n \rightarrow N_s^{n+1}, N_a^n \rightarrow N_a^{n+1}$)。

iii) 土壌への核種吸着: 各セルにおける N_s^{n+1}, N_a^{n+1} が新たに計算された後、核種の吸着/脱離を再現する。例えば、Henry 型の吸着平衡モデルの場合、式 (11) および (12) の関係を満足するように N_s^{n+1}, N_a^{n+1} を次のように補正する。

$$(N_s^{n+1})' / (N_a^{n+1})' = \theta / \{ \theta + (1-f) \cdot \rho \cdot K_d \} \quad (15)$$

$$(N_s^{n+1})' + (N_a^{n+1})' = N_s^{n+1} + N_a^{n+1} \quad (16)$$

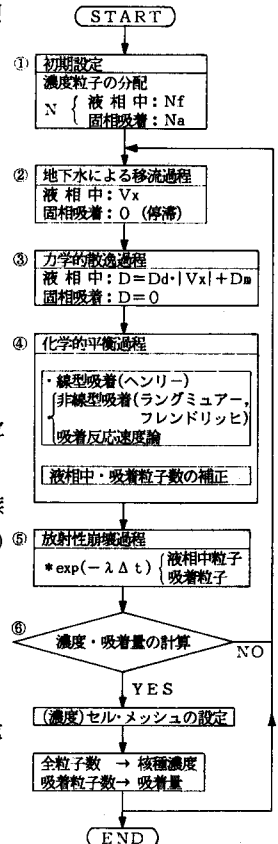
iv) 放射性核種の 1 次崩壊 (重み補正): 式 (3) で定義されている濃度粒子の重みが、注目している 1 成分核種に対して次式に従って一様に減衰する。

$$W_c^{n+1} = W_c^n \cdot \exp(-\lambda \cdot \Delta t) \quad (\lambda: \text{核種崩壊定数}) \quad (17)$$

v) 濃度換算: 液相中における濃度粒子の核種濃度への換算は次式で行われる。 図-4 モデルのフロー

表-1 吸着モデル

吸着モデル	吸着 (等温, 速度) 式
Henry 型	$q = K_d \cdot C$ K_d : 分配係数
Langmuir 型	$q = \frac{q_{\max} \cdot a \cdot C}{1 + a \cdot C}$ $q_{\max}, a$: 定数
Freundlich 型	$q = a \cdot C^{1/n}$ a, n : 定数
反応速度論モデル	$\frac{\partial q}{\partial t} = K_1 C - K_2 q$ K_1 (吸着), K_2 (脱着): 速度定数



$$C_i^{n+1} = \{ (N_s^{n+1})'_i \cdot W_c^{n+1} \} / \{ f \cdot S \cdot \Delta V_i \} \quad (S: \text{飽和度}) \quad (18)$$

以上、i)~v)のプロセスを反復することにより、任意の時刻・位置における核種の液相中濃度および土壌吸着量が求められる。

3.2 非線型タイプ吸着モデルの準線型化

表-1に示す吸着モデルの中で、線型吸着タイプのHenry型モデルを除いては、粒子の運動がその濃度に依存するため、各ステップ毎の濃度を計算するための離散化格子系を設定して反復計

算などを行う必要がある。したがって、モデルの煩雑さや演算時間の増大を招くことになるので、実用性を損わない程度にモデルの簡便化を行うこととし、図-5に示すように非線型タイプの吸着等温式を折線に近似することにより、準線型化して用いることも可能としている。

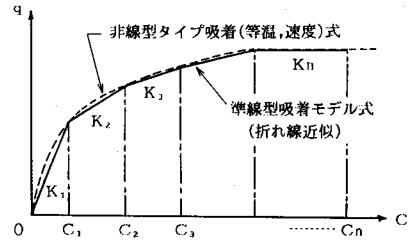


図-5 準線型吸着モデル

3.3 物理パラメータ

式(13)における移流速度成分Wおよび散逸成分Dは、共に便宜上設定したオイラー座標系の x, y, z 軸成分に一致するものとして、それぞれ次のように地下水流速ベクトルおよび分散係数テンソルを記述しておく。

$$\mathbf{V} = (u, v, w) \quad (19) \quad [\mathbf{D}] = \begin{bmatrix} D_{xx} & D_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & D_{zz} \end{bmatrix} \quad (20)$$

以上のようなLagrange的に記述された粒子の位置は各1次元方向の運動の合成により求められる。⁴⁾

3.4 境界条件と初期条件

基本的には、水粒子の場合における2.2節と同様の条件が設定される。一般にLagrangeモデルにおいては境界条件等の設定がかなり容易であり、⁴⁾複雑な地形等への適用において有利である。図-6に基本的な境界条件の設定方法を示しておく。

3.5 平滑化操作

上述のような粒子の移動をLagrange的に解く方法では、計算で得られる粒子濃度分布曲線が滑らかでないことが多い。そこで、移動平均法を用いることにより必要に応じて粒子濃度分布を平滑化しながら計算を進める。

4. 乱数発生コードの作成と検定

MCMの適用に際しては乱数列を電子計算機により発生する必要がある。しかし、機械的に発生させられた乱数は、算術乱数と呼ばれ、⁸⁾真の意味でのランダム性を必ずしも有しない擬似乱数である。また、算術乱数における繰り返し周期(乱数周期)は使用計算機の最大許容桁数に依存しており、語長の大きい計算機システムの使用が望ましい。このように、発生乱数の信頼性

は使用計算機と発生コードにかなり依存するところから、その検定方法を確立しておく必要がある。本研究では、64ビットマシン(CRAY-1)を用いて算術乱数発生ルーチンを作成するとともに、発生乱数列の検定について検討を行った。区間[0,1]内の一様算術乱数を発生するために用意されたコードの一覧表を表-2に示す。これらのコードを用い、表-3に示すような設定条件の10ケースについて、10000個の乱数を発生させ、平均および出現頻度を各期待値と比較した。さらに、その結果が比較的良好と思われる5ケース(表-3中の※印つき)を対象に、サンプル数を100000個として以下の4種類の検定を行った。

- i) 一様性の検定: 平均と分散を計算し、平均値とのズレ度合を調べる。
- ii) 系列相関検定: 算術乱数の系列相関が独立であるとみなせること。
- iii) ギャップテスト: パラツキ具合が乱数性をもつとみなせる。

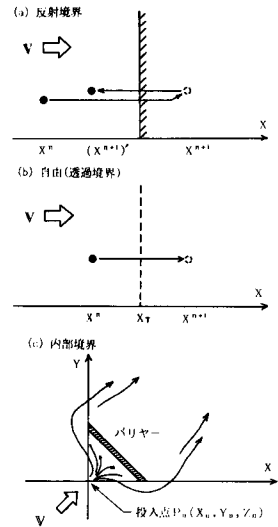


図-6 境界条件設定

表-2 乱数発生コード

コード名	乱数発生手法
RANF	CRAY-1組込みルーティン
RAND	Lewis & Payne法 (変形Tausworthe法)
REST	乗積残差法
RALM	Lehmer法

iv) 連の検定： 乱数列の相互の関連性が無いと完全にみなせること。

以上の検定の結果、一様

表-3 乱数発生 の計算 ケース

乱数の発生方法としては、CRAY-1 の組込みルーチン、Lehmer法、乗積残差法などが良好な結果を得た。これより、以下の計算では演算時間の有利さから組込みルーチンを使用する。

一方、移流拡散方程式の厳密解との比較などに際しては一様乱数を標準正規乱数（平均0，分散1）に変換

する必要がある。そこで、渋谷およびBox-Mullerの変換方法を用いて厳密解との比較を行ったところ、後者の方がより良好な結果を得た。

以上、本章では電子計算機による算術乱数の発生と検定について述べたが、図-7 算術乱数の検定これらの手順は他の電算機を使用する際にも十分に有効であろうと考える。

5. 解析結果

水分移動および核種地中移行に関し、本解析手法を適用した計算値と実験値あるいは有限差分法による数値解などとの比較検討を行った数例の結果について以下に述べる。

5.1 水分移動（鉛直1次元浸透実験結果との比較）

内径15 cm，高さ120 cmの亚克力製カラムの上部から降雨装置を用いて、80 mm/hの降雨強度に相当する雨滴を降下浸透させた吸水過程の実験結果との比較を行った。実験条件、その比較のために適用した本解析手法および有限差分法の主要な条件を示したのが表-4である。

実験値の θ は、透過型の γ 線密度計による（透過型中性子水分計も併用）各測定点における10分間隔のデータを示したものであるが、水分フロントの到達後に比較的急激に増大して飽和度 $S = 0.58$ ($\theta = 0.25$) 前後ではほぼ一定状態を保つ。これに対して、計算値の方は水分上昇後の一定状態の θ がいずれも実験値よりも小さくなっており、特に差分解の場合はこの傾向が大きい。数値計算の境界条件はいずれも降雨強度を上端からの浸透速度と仮定するノイマン条件にもとづいているが、差分法のようなEuler的手法の場合にはこのようなフラックスが与えられるような境界値問題を苦手としており、フラックス収支の整合性をとるには特別な配慮も必要であると考えられる。一方、MCMを用いた本方法では、基本的にフラックスの収支は保存されているが、水分フロントの水分上昇曲線は、本研究による結果の方が実験値あるいは差分解と比較してかなりなだらかである。ここでは便宜的に $\theta_c = \theta_r$ と

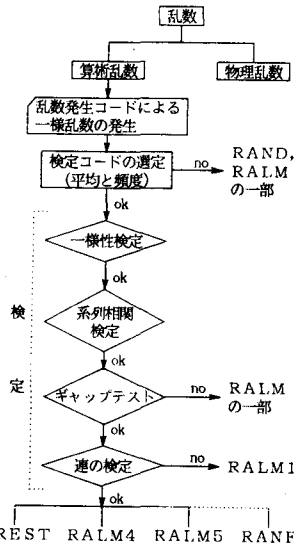


表-4 計算条件（水分移動）

実験条件	試料：海岸砂，比重：2.68，間隙率：0.432 降雨強度：80mm/hr (t=0より一定継続) 初期条件：湿潤密度1.58g/cm ³ ， $\theta = 0.057$ $K(\theta), \Psi(\theta)$ 関数：実験式
有限差分法	基礎式：Richards式→Crank-Nicholson法 $\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left\{ K(\theta) \left(\frac{\partial \Psi(\theta)}{\partial z} - 1 \right) \right\}$ $\Delta t = 1$ 秒 (反復5~10回)， $\Delta z = 2.5$ cm
モカトルテロ法	粒子数 (初期)：5130個/m 上端境界：2個/秒ずつ増加 $\Delta t = 1$ 秒， $\Delta z = 2.5$ cm $\theta_c = \theta_r = 0.057$ ，平滑化なし

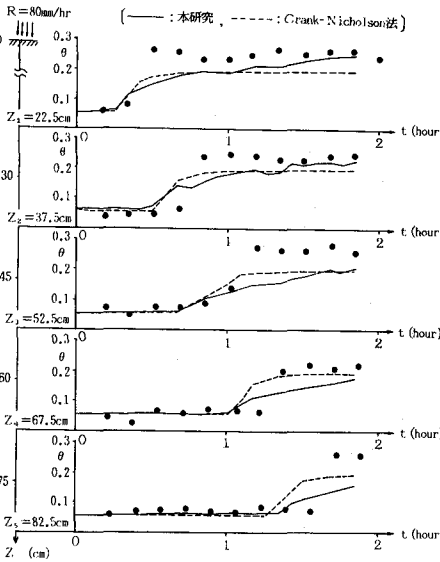


図-8 実験値と計算値の比較（水分移動）

したが、適切な θ_c が与えられれば現象により近い表現が可能と思われる。また、水分フロントの移動速度に關しては、実験値の約 0.95 cm/min に対して両数値解はやや大き目ではあるが、概ね良く一致していた。

5.2 核種地中移行（1次元移流拡散）

図-9は核種の崩壊を考慮した1次元の移流拡散方程式の厳密解との比較を行ったものであり、本研究による計算値は若干のゆらぎがみられるもののかなり良好な一致を得た。これにより、基本的な計算スキームの妥当性が示されたと考える。

一方、表-1に示した4種の吸着モデルについて、本研究による数値シミュレーションを行い、各モデルの比較を試みたものが図-10である。経過時間によっても異なるが、液相中核種濃度はほぼ（速度式>Freundlich型>Langmuir型>Henry型）の順で大きいことが示された。当然のことながら、吸着量の大きさはこの逆の順となる。

6. まとめ

本研究では、地中での水分移動ならびに核種移行現象のLagrange的シミュレーション手法を開発し、実験値あるいは厳密解との比較により十分な適用性を有することを明らかにした。本手法は、従来からよく用いられているEuler的手法には無い長所をいくつか有しており、放射性核種地中移行現象のような複雑かつ長期にわたる問題に対しては有効なシミュレーションが可能であると考える。今後は、地下水流動および核種地中移行現象に関する実験的研究をさらに進め、これらの現象の解明を行ってゆくとともに、本シミュレーション手法をさらに発展させてゆく予定である。

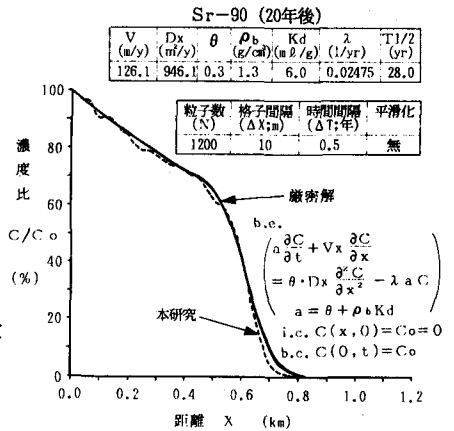


図-9 厳密解との比較（核種移行）

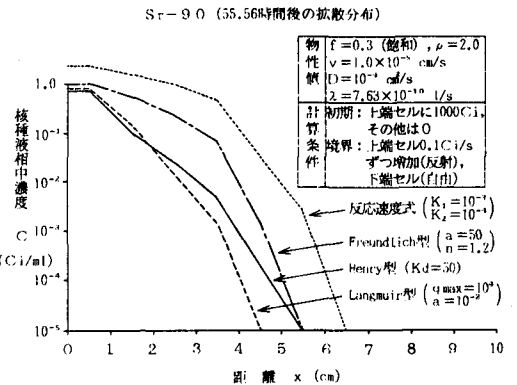


図-10 各種吸着モデルの比較計算例

〔参考文献〕

- 1) 例えば、河西・五十嵐・馬原：低レベル放射性核種の地中移行シミュレーション，土木学会第40回年次学術講演会，PP. 691～692(Ⅱ)，1985。
- 2) 竹内等：確率モデルによる多孔体内の流れのシミュレーション，土木学会論文報告集，第187号，PP. 79～93，1971。
- 3) 例えば、榎根勇：水文学，大明堂発行，PP. 135～179，1980。
- 4) 例えば、平岡・古市・中條：確率微分方程式モデルによる移流拡散現象のシミュレーションに関する研究，土木学会論文報告集，第383号，PP. 69～78，1983。
- 5) Kimura, H. and Muraoka, S. : Numerical Model of Radionuclide Migration in Geologic Media, J. of Nuclear Science and Technology, vol. 20, No. 6, PP. 503～510, 1983.
- 6) Washburn, J. F. et al. : Multicomponent Mass Transport Model : A Model for Simulating Migration of Radionuclides in Groundwater, Pacific Northwest Laboratory, Richland, PNL-3179/UC-70, 1980.
- 7) 五十嵐・河西・馬原：粘土鉱物によるコバルト，マンガンおよびストロンチウムの吸着特性，電力中央研究所研究報告 385006, PP. 1～24, 1985。
- 8) 津田孝夫：モンテカルロ法とシミュレーション，培風館発行，PP. 1～237，1969。
- 9) 伏見正則：一様乱数の発生について，特集「乱数」，数理科学10，サイエンス社，PP. 23～27，1980。
- 10) 渋谷政昭，伏見正則：ORマンと情報処理技術者のための「乱数」講座，第4回ORセミナー資料，PP. 1～38，1983。
- 11) 河西・塩崎・中井：不飽和土中の水分移動特性に関する実験的考察，土木学会第30回水理講演会論文集，1986（投稿中）。