

確率論的手法による低レベル放射性核種の地中移行解析

Analysis on Underground Migration of Low-Level Radionuclides by Stochastic Method

(財)電力中央研究所 河西 基 M.Kawanishi

(株)三菱総合研究所 ○井上 幸雄 Y.Inoue

(財)電力中央研究所 五十嵐 敏文 T.Igarashi

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、1990年から青森県下北地区において集中貯蔵が開始される予定であり、陸地処分の安全性が確認された後には貯蔵から処分へ移行する見通しである。処分の安全性を確認するためには、放射性核種の処分施設からの漏出、土壌～地下水中での移行などさまざまな経路を経て人間への被曝に至る過程を予測評価することが重要であり、そのための解析手法を確立する必要がある¹⁾。しかしながら、対象とする核種の移行挙動は、物理・化学的に複雑な要素を多く含んでおり、一般的によく用いられる有限要素法などによる決定論的解析では困難な面が多々ある。

著者らは、多孔媒体中での水分移動と核種移行挙動に関し、ランダムウォークモデルを用いた確率論的解析手法の適用について既に報告した²⁾。本論文では、低レベル廃棄物陸地処分時安全評価のための放射性核種地中移行挙動に関する確率論的解析手法について、鉛直1次元カラムを用いた不飽和土中での核種移行実験との比較検討³⁾をさらに加えた結果を述べる。

2. 安全評価シナリオの概要

電力中央研究所では、図-1に示すような一連の低レベル廃棄物陸地処分時安全評価シナリオを設定して安全評価手法の確立をめざしている。このうち、本論文ではいわゆる天然バリア中での放射性核種移行挙動に関する確率論的解析手法について述べる。

3. 解析モデルの内容

移流拡散現象をモデル化して数値解析する手法は図-2に示すような二つの立場に大きく分類される。すなわち、一つは有限差分法や有限要素法で代表される Euler 的アプローチ（決定論的手法）であり、他の一つは粒子移動法、モンテカルロ法で代表される Lagrange 的アプローチ（確率論的アプローチ）である。本研究で用いている低レベル放射性核種の地中移行解析手法は後者に属するものであり、その概要を以下に述べる。

一般に、不飽和土中の放射性核種移流拡散解析では、式(1)で表される核種の吸着や放射壊変を考慮した移流拡散方程式を有限差分法や有限要素法により決定論的に数値解析することがよく行われている⁴⁾。

$$\frac{\partial}{\partial t} \{ \theta C + \rho_b q \} - \nabla \cdot \{ \theta D \nabla C \} + \nabla \cdot \{ VC \} + \lambda (\theta C + \rho_b q) = 0 \quad (1)$$

$$\rho_b = (1 - f) \rho \quad (2)$$

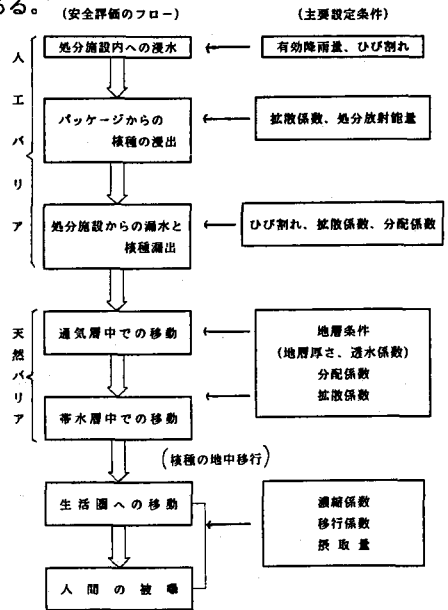


図-1 安全評価のフロー

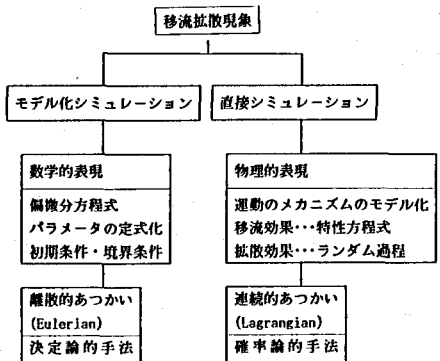


図-2 移流拡散現象の数値モデル

ここに、 θ ：体積含水率、 C ：核種の地下水中濃度、 ρ_b 、 ρ ：土壌のみかけ密度、真密度、 q ：核種の土壌中濃度、 D ：分散係数、 V ：地下水流速、 λ ：核種の崩壊定数である。上式における土壌への核種吸着量を表す q については、通常、線型吸着平衡論にもとづく次のHenry型吸着モデル

$$q = k_d C \tag{3}$$

(k_d ：分配係数)

を用いて解析されることが多い⁵⁾。一方、このような移流拡散現象のLagrange的解析については比較的多くの研究例があるが⁶⁾、放射性核種の地中移行を対象としている報告例はあまり多くない⁷⁾⁸⁾。

本研究では、図-3に示される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挙動をLagrange的に表現した濃度粒子モデルを用いて直接的にシミュレーションする3次元の解析モデルを以下のように構成した²⁾。

(1)核種濃度粒子モデルの定義

図-3に示す土壌セル*i*の中に含まれる核種 (Q_i) は次の

- 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)

からなると考え、 n 時刻ステップでの対応する粒子数を N_i^n とすれば

$$\begin{aligned} Q_i^n &= W_c \cdot N_i^n \\ &= [Q_s + Q_a], i \end{aligned} \tag{4}$$

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 は次式で表される。

$$C = Q_s / (\theta \cdot \Delta V_i)$$

(2)核種の土壌吸着モデル

土壌への物質吸着モデルとしては、式 (3)で示した線型吸着モデルの他に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についても対象とする問題に応じて用いることとし、表-1に代表的なモデルをまとめておく。

ここでは、一般的に土壌セル中で吸着平衡 (等温吸着) が成り立つと仮定し、単位の土壌質量あたりの核種吸着量 (q) と核種濃度 (C) との関係式

$$q = f(C) \tag{6}$$

が与えられたとすれば、土壌セル中の吸着量 (Q_a) および液相中の核種量 (Q_s) はそれぞれ次のように表される。

$$\begin{aligned} Q_a &= (\text{固相質量}) \times q \\ &= (1 - f) \cdot \Delta V_i \cdot \rho \cdot q \end{aligned} \tag{7}$$

$$Q_s = Q - Q_a \tag{8}$$

ここに、 f ：間隙率、 ρ ：土壌密度

この核種量は式(4)で定義される濃度粒子数に比例する

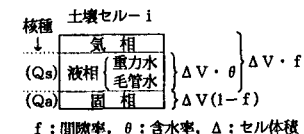
ので、液相中および固相表面吸着の各粒子数を N_s および N_a とすると次の関係を得る。

$$N = N_s + N_a \tag{9}, \quad N_s = Q_s / W_c \tag{10}, \quad N_a = Q_a / W_c \tag{11}$$

(3)解析モデルのアルゴリズム

上述の対応関係に基づき、図-4に示すようなモンテカルロ法(MCM)を用いた核種地中移行の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

(a). 3相の構成と含有核種



(b) 移流・拡散過程⁵⁾

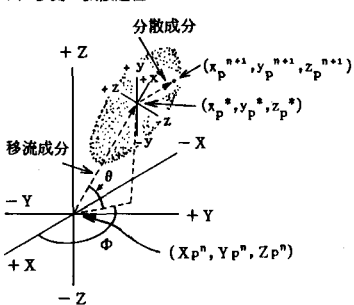
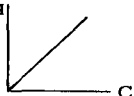
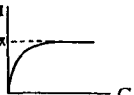
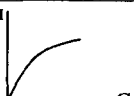


図-3 核種粒子モデル

表-1 吸着モデル

吸着モデル		吸着 (等温、速度) 式
平衡吸着モデル	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

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。

- ①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(4)～(11)の關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。

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

$$N_a = \frac{(1-f) \cdot \rho \cdot K_d}{\theta + (1-f) \cdot \rho \cdot K_d} N \quad (13)$$

ここに、 K_d ：分配係数

- ②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。

$$[\text{液相中粒子}] N_s^{n+1} = Z_s^n + W^n \cdot \Delta t + \sqrt{24D \cdot \Delta t} (0.5 - R(1)) \quad (14)$$

$$[\text{土壌吸着粒子}] Z_a^{n+1} = Z_s^n \quad (15)$$

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($N_s^n \rightarrow N_s^{n+1}$, $N_a^n \rightarrow N_a^{n+1}$)。

- ③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(12)と(13)の關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。

$$(N_s^{n+1})' / (N_a^{n+1})' = \theta / \{ \theta + (1-f) \cdot \rho \cdot K_d \} \equiv 1 / K_f \quad (16)$$

$$(N_s^{n+1})' + (N_a^{n+1})' = N_s^{n+1} + N_a^{n+1} \quad (17)$$

ここに、 K_f ：遅延係数

- ④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したがって一様に減衰する。

$$W_i^{n+1} = W_i^n \cdot \exp(-\lambda \cdot \Delta t) \quad (\lambda: \text{核種崩壊定数}) \quad (18)$$

- ⑤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必要に応じて次式で行われる。

$$C_i^{n+1} = \{ (N_s^{n+1})'_i \cdot W_i^{n+1} \} / \{ f \cdot S \cdot \Delta V_i \} \quad (S: \text{飽和度}) \quad (19)$$

以上、①～⑤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を求めることができる。

なお、便宜的に一次元モデルについて説明したが、各運動方向成分の単純な重ね合わせにより、Markov過程を前提とする本解析手法においては、多次元への拡張を容易に行うことができる。

(4)境界条件

基本的には、ディリクレ条件、ノイマン条件および内部境界条件（初期条件を含む）がそれぞれ考慮される。これらに対応して、粒子イメージでの境界条件設定の概念を示したのが図-5である。一般に、Lagrangeモデルでは境界条件等の設定がかなり容易であり⁶⁾、複雑な地形等への適用において有利である。

以上、解析モデルの概要を述べたが、非線型タイプ吸着モデルの準線型化あるいは粒子濃度分布の平滑化操作なども考慮されている²⁾。

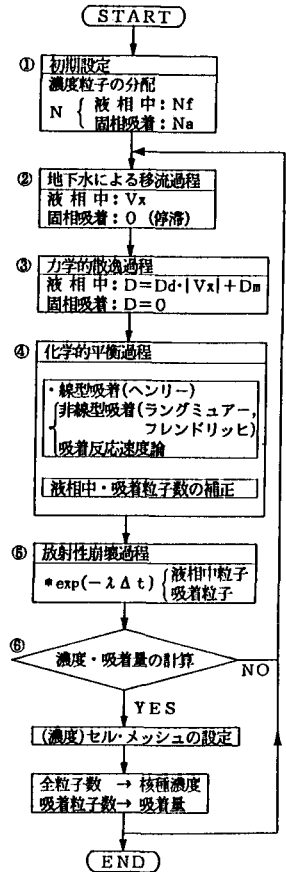


図-4 解析モデルのフロー

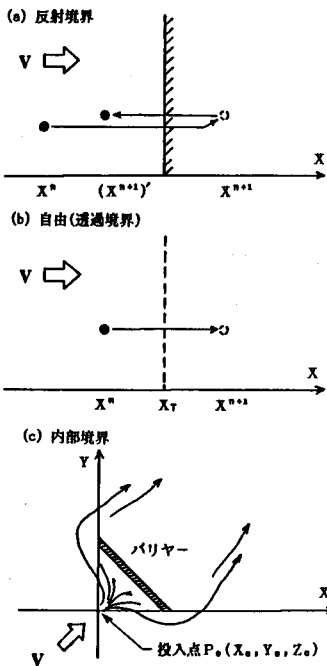


図-5 境界条件設定

4. 解析モデルの特性検討

一般的に、本解析モデルのようなLagrange的解析における数値解析上の主な特徴は表-2のように整理される。本解析手法の適用性については、簡単な放射性核種の一次元移流拡散問題の厳密解に適用して、基本的に十分な精度で解析できることを確認している³⁾。ここでは、本解析モデルの数値解析上の基本特性について、一様流速・定常漏出の一次元移流拡散問題を対象として演算時間に対する粒子数 N の影響を調べた。入力パラメータと計算結果を表-3および図-6に示すが、粒子数の増大とともに演算時間も線形的に増加することが示された。一方、定量瞬時放出問題として有限差分法と本解析法を適用した結果を比較したところ、前者に対する後者の演算時間比は、粒子10,000個の場合に約2.2倍、50,000個とした場合に約10倍程度であった。

5. 不飽和砂層中の核種移行実験結果³⁾への適用

(1) 実験の概要

実験装置は、図-7に示すように土中水採取用のポーラスカップを取付けた直径10cm、長さ60cmの亚克力製カラムとマリOTTタンクの底部に注射針を取付けた降雨装置(降雨強度 $R=20\text{mm/hr}$)からなる。

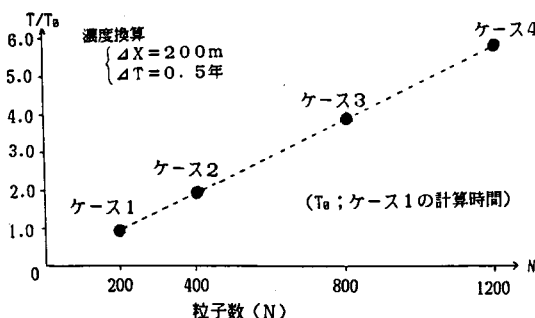


図-6 粒子数の影響

表-2 Lagrange的解析手法の特徴

長所	① 本質的に質量保存性を有する。
	② 安定性が高い。
短所	③ 移流のラグランジュ的取扱により、基本的に数値が蓄積しない。
	④ 粒子数 N を増大させることで、精度は容易に高められる。
	⑤ 解の重ね合わせが可能であり、三次元への拡張が簡単(マルコフ課程)。
	⑥ 小型計算機システムにも容易に適用可能であり、経済的である。
	⑦ ソース/シンクの結合が可能である。
	⑧ プログラムが簡潔に記述できる。
	⑨ 境界条件の取り扱いが簡単。
短所	① 演算時間は、同程度の精度を必要とするならば、三次元計算を除いてFDM, FEMより一般的に速い。
	② 乱数ノイズがあるが、平滑化(フィルター)によりある程度除去できる。
	③ 粒子数の決定が経験的である。

表-3 計算条件(粒子数の影響)

パラメータ	数値(単位)
θ	0.3
Pb	1.3×10^3 (kg/m ³)
Dx	9.4608 (m ² /yr)
Vx	1261.44 (m/yr)
Kd	6×10^{-3} (m ³ /kg)
λ	0.02475 (1/yr)
T1/2 (半減期)	28.0 (yr)

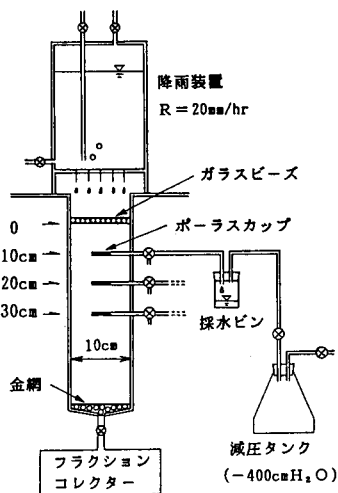


図-7 核種移行実験装置

実験には茨城県鹿嶋産の砂（比重2.68、均等係数1.91）を使用した⁹⁾。実験期間中の砂層内の水分変化はガンマ線密度計・中性子水分計を用いて測定し、実験終了後は炉乾燥により試料の含水量分布を確認した。トレーサ溶液は表-4に示す4種類の溶液を用い、Sr, Co, Ca, Mgはプラズマ発光分析法、Csは原子吸光光度法により分析した。また、模擬核種の移行試験終了後に、土中水の移動速度を求めるために塩素イオン（NaCl 1000mg/ℓ）を用いて非吸着性トレーサ試験を行った。

(2)実験結果への適用

水分量の測定結果の一例を図-8に示す。流出端の影響によって試料下端で水分量が増加しているが、試料

表-4 トレーサ溶液とpH

実験ケース	トレーサ溶液濃度 (単位 mg/ℓ)	pH
S-1	Sr=10, Ca=10, NaHCO ₃ =50	7.4~7.9
S-2	Co=10, Ca=10, NaHCO ₃ =50	7.3~7.8
S-3	Cs=10, Ca=10, NaHCO ₃ =50	7.2~7.6
S-4	Sr=10, NaHCO ₃ =50	7.5~7.8

表-5 核種移行計算パラメータ

実験ケース	間隙率 n	体積含水率 θ	真密度 ρ_s (g/cm ³)	水分移動速度 V (cm/h)	分配係数 k _d (ml/g)	分散係数 D (cm ² /h)
S-1	0.412	0.175	2.68	11.4	23	2.0
S-2	0.416	0.185	2.68	10.8	82	70.0
S-3	0.420	0.186	2.68	10.8	36	5.0
S-4	0.422	0.202	2.68	9.9	70	2.0

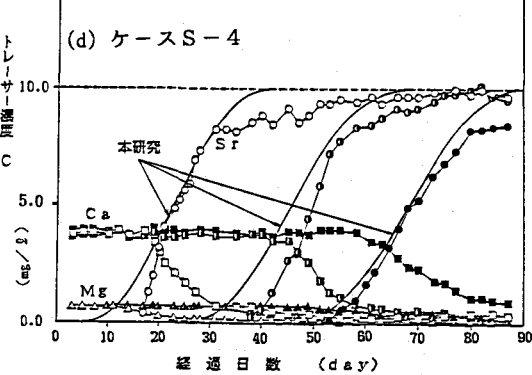
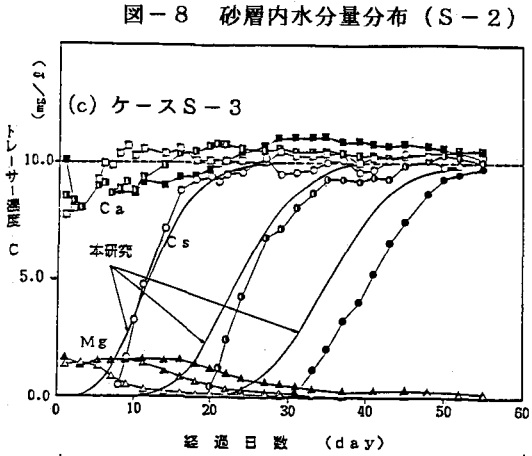
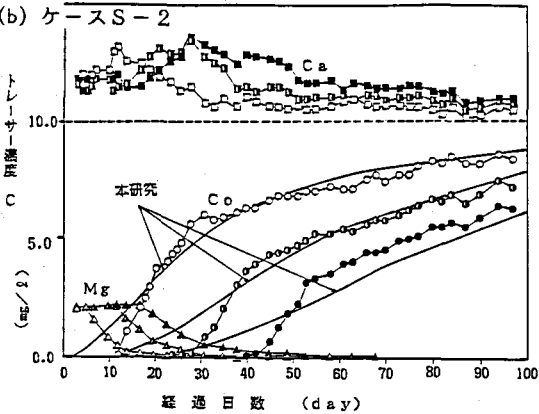
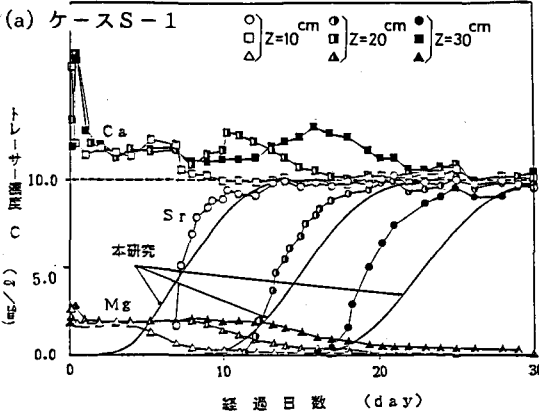
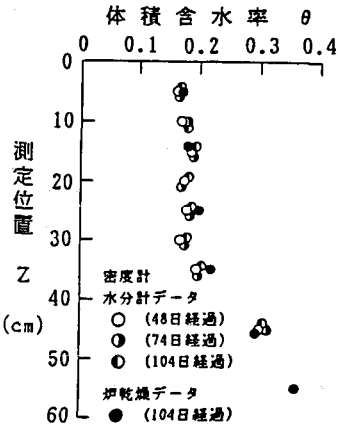


図-9 核種移行実験結果と本解析モデルによる数値解との比較

上端から30cmまでの範囲ではほぼ様な水分量とみなすことができる。解析に必要な分配係数 K_d については、土壌水分と核種の各トレーサ破過曲線から測定することができる¹⁰⁾。

ここでは、Henry型の吸着モデルを適用した場合の分配係数 K_d と分散係数 D とを、実験結果と厳密解の比較からまず同定した。 K_d については、 ΔT 時間にカラム上面から流入する核種量 Q_c と ΔT 時間後のカラム内液相中核種量 Q_c' との関係が、式(16)で表される遅延係数 K_f を介して次のように表されることから一義的に決定される。

$$Q_c = K_f \cdot Q_c' \quad (20), \quad Q_c = R \cdot C_o \cdot A_o \cdot \Delta T \quad (21), \quad Q_c' = \int_0^L C' \cdot \theta \cdot A_o \cdot dZ \quad (22)$$

ここに、 C_o : 流入溶液中核種濃度、 C' : カラム内液相中核種濃度、 A_o : カラム断面積、 L : カラム長

次に、分散係数 D については $C/C_o=0.5$ 付近の濃度曲線の勾配が合うように各核種ごとに決定した。このようにして推定された平均的なパラメータ値を示したのが表-5であり、これを用いて本解析モデルによる数値解と実験値とを比較したのが図-9である。 Sr の結果からも分かるように競合元素である Ca が共存する場合は、共存しない場合に比べて分配係数が小さく、吸着座が Ca によってかなり占有されたためと考えられる。また、 Ca については濃度の時間変化がなだらかでいわゆる Tailing現象を示している。この結果、同定された C_o ~砂層系のみかけ上の分散係数も大きくなっている。 C_o の場合、水酸化物を形成するために液相中濃度変化から Sr 、 Cs とは本質的に異なる現象を呈していると思われる。一方、すべてのケースで、 Ca 、 Mg 濃度が核種濃度の増加とともに流入濃度に遅減し、また核種の吸着量と Ca 、 Mg の浸出量とが化学量論的にほぼ一致することから、吸着がイオン交換により生じていることがわかる。また、各測定位置を基準として求めた遅延係数 K_f の値には大きなバラツキはなかったことから、水分量が一定であれば不飽和砂層中での核種の移行挙動について本解析モデルを用いて十分に表現できることが示された。

6. まとめ

本論文では、粒子モデル(モンテカルロ法)に基づく確率論的手法を用いて飽和~不飽和土中における低レベル放射性核種地中移行挙動の確率論的解析手法を提案し、厳密解や実験値との比較検討により十分な適用性を有することを示した。ただし、土中での分散係数、遅延係数あるいは分配係数等の各パラメータ特性が求められていることが前提であり、これらのパラメータと水分量あるいは共存物質との関係などについて今後さらに検討を行い、解析モデルに反映させてゆきたい。

最後に、本研究の実験遂行上において多大な御協力を頂いた(株)間組の塩崎功氏および(株)CRSの中井健二、黒沢健哉の両氏に対して記して感謝の意を表する次第です。

参考文献

- 1) Kawanishi, M., Igarashi, T., Mahara, Y., and Maki, Y.: Computer models for safety assessment on land disposal of low level wastes, Proc. of Symp. on Waste Management, Arizona, vol.3, pp.175-130, 1987-3
- 2) 河西 基、井上幸雄: 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、第30回水理講演会論文集、pp.289-294, 1986-2
- 3) 河西 基、塩崎 功、五十嵐敏文: 不飽和砂層中の核種移行特性に関する実験的考察、土木学会第42回年次学術講演会、(II)、pp.972-973, 1987-9
- 4) 例えば、河西 基、五十嵐敏文、馬原保典、満木泰郎: 有限要素法による放射性核種地中移行解析手法の開発、電中研究報告 385026, pp.1~39, 1986-4
- 5) 井上頼輝、森沢真輔、馬原保典: 通気層における放射性核種の移動、(I)、(II)、日本原子力学会誌、vol.17, pp.376-384 (1975)、; vol.18, pp.600~604 (1976)
- 6) 例えば、平岡正勝、古市 徹、中條 寛: 確率微分方程式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、No.338, pp.69~78, 1983
- 7) 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
- 8) Washburn, J.F. et al.: Multicomponent Mass Transport: A Model for Simulating Migration of Radionuclides in Groundwater, Pacific Northwest Laboratory, Richland, PNL-3179/UC-70, 1980
- 9) 河西 基、塩崎 功、中井健二: 不飽和土中の水分移動特性に関する実験的考察、第30回水理講演会論文集、pp.385~390, 1986
- 10) 堀内将人、井上頼輝、森沢真輔: 不飽和分配係数の測定法について、京都大学環境衛生工学研究会第5回シンポジウム講演論文集、pp.253~260, 1983