地下水浸透場における多核種拡散問題の均質化法解析

岡山大学　環境学研究科 学生会員 ○大野 宏和

1. はじめに

我が国におけるエネルギーの安定供給のためには，当面，原子力エネルギーの利用は必須であり，放射性廃棄物の処理も今後避けることのできない問題である．現在，高レベル放射性廃棄物を一定期間貯蔵した後，地中深くに処分する地層処分が検討されている．高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種の多くは，非常に長い半減期を持つことから，地層処分の安全性を評価するためには，放射性核種の移行挙動を，長期間に渡って正確に予測しなければならない．その際，核種移行に関するマクロ実験によって同定したパラメータに依存した予測式では，長期間の予測精度を保証するすべはなく，十分な信頼性での安全性評価は望めない．そこで，地層処分に利用が検討されている粘土等の材料に関する分子レベルのシミュレーション結果を適切にアップスケールし，核種移行解析を行い，最終的には放射性核種が漏出した場合の被ばく線量の評価を行うべく種々の研究が行われている．

本研究はそのような試みの一環であり，数千年のタイムスパンを想定した放射性核種移行解析を行うためのツール作成を目的として，核種移行に支配的な拡散現象をシミュレートするための数値解析プログラムを開発したものである．ここでは，拡散現象のシミュレーションに，粘土結晶や地下水の実流速分布といったミクロ構造の特性を反映させることができるよう，均質化法解析の理論を用いる．具体的には，分子動力学シミュレーションによりミクロな拡散係数，粘性係数が得られた場合に，地下水流動状況を加味して均質化係数であるマクロスケール流速と拡散係数を導出する方法を示す．また，それらの均質化係数を使って，実際に拡散解析を行うことができるよう有限要素法コードの開発を行う．その際，放射性廃棄物に含まれる核種は複数あり，拡散において相互に影響しあうことも知られていることから，核種間の相互作用を考慮した解析が可能なプログラムを作成する．

以下では，最初に，物質輸送理論に基づく拡散方程式の導出と均質化理論の導入について述べ，ミクロ方程式，マクロ方程式に対する，有限要素法の定式化を示す．次に，高レベル放射性廃棄物からの放射性物質漏出のシナリオについて概略を述べ，それを再現した拡散問題の数値解析例を示す．最後に，得られた結果をまとめ，今後の課題について述べる．

2. 飽和多孔質媒体における多成分混合溶液の拡散

放射性核種の移行を，ここでは多成分混合溶液が多孔質体中を拡散する現象として考える．考慮する核種の数は N とし，飽和多孔質媒体を固相と液相の部分に分け, それぞれに対して質量保存則とレイノルズの輸送定理を適用する．このとき，液相における α 核種の質量保存則は

$$\int_\Omega \left\{ \frac{\partial n\rho c_a}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(n\rho c_\alpha v_i^\alpha\right) + n\phi_\alpha \gamma_\alpha \right\} dv - \int_{S_{sf}} \zeta_\alpha ds = 0 \tag{1}$$

と書くことができる．ここに，n は多孔質媒体の空隙率，ρ は溶液の平均質量密度，c_α は α 種の質量パーセント濃度，v_i^α は α 核種の粒子速度，φ_α は体積分率，γ_α は単位体積，単位時間当たりの湧き出し量を意味する．また，Ω は任意の領域を，S_{sf} は固相-液相境界を指し,ζ_α は S_{sf} における単位面積，単位時間当たりの吸着量を表す．この式に，質量流束 j_i^α と濃度勾配の間に Fick 則

$$j_i^\alpha = n\rho c_\alpha \left(v_i^\alpha - v_i\right) \tag{2}$$

が成り立ち，さらに，流体は非圧縮であるものとして

$$\frac{\partial v_i}{\partial x_i} = 0 \tag{3}$$

とする．ただし，v_i は流体の平均速度である．これらの関係を式 (1) に代入すれば,

$$\int_\Omega \left\{ \frac{\partial n\rho c_a}{\partial t} + v_i \frac{\partial}{\partial x_i}\left(n\rho c_\alpha\right) + \frac{\partial j_i^\alpha}{\partial x_i} + n\phi_\alpha \gamma_\alpha \right\} dv - \int_{S_{sf}} \zeta_\alpha ds = 0 \tag{4}$$

となる．一方，固相における質量保存則は，固体中拡散による粒子速度は無視できるものとして，

$$\int_\Omega \left\{ \frac{\partial \left(1-n\right)\rho_s c_\alpha^*}{\partial t} + \left(1-n\right)\phi_\alpha^s \gamma_\alpha^s \right\} dv + \int_{S_{sf}} \zeta_\alpha ds = 0 \tag{5}$$

と表わす．ここに，c_α^* は固相における α 核種の質量濃度を，φ_α^s および γ_α^s は固相における α 核種の体積分率と, 単位体積，単位時間当たりの湧き出しを意味する．式 (1) と式 (5) の両辺を加えれば，液相-固相境界における吸着項が相殺されて次の式が得られる．

$$\int_\Omega \left\{ \frac{\partial n\rho c_a}{\partial t} + v_i \frac{\partial}{\partial x_i}\left(n\rho c_\alpha\right) + \frac{\partial j_i^\alpha}{\partial x_i} + \frac{\partial \left(1-n\right)\rho_s c_\alpha^*}{\partial t} \right\} dv + \int_\Omega \left\{ n\phi_\alpha\gamma_\alpha + \left(1-n\right)\phi_\alpha^s\gamma_\alpha^s \right\} dv = 0 \tag{6}$$

さらに，c_α と c_α^* の間には, 分配係数 K_d によって表される線形吸着等温式の関係：

$$c_\alpha^* = K_d c_\alpha \tag{7}$$

が成り立ち，質量流束 j_i^α と質量濃度 c_α の間には Fick の法則:

$$j_i^\alpha = -n\rho\tilde{D}_{ij}^{\alpha\beta}\frac{\partial c_\beta}{\partial x_j} \tag{8}$$

が成り立つと仮定すれば，質量保存則から導かれた式 (6) は

$$\int_\Omega \left\{ R_d\frac{\partial c_a}{\partial t} + v_i\frac{\partial c_\alpha}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\tilde{D}_{ij}^{\alpha\beta}\frac{\partial c_\beta}{\partial x_j}\right) + \gamma_\alpha^* \right\} dv = 0 \tag{9}$$

の形に書くことができる．ここに，R_d は

$$R_d \equiv 1 + \frac{(1-n)\rho_s K_d}{n\rho} \tag{10}$$

で定義され, 緩和係数と呼ばれる．また,

$$\gamma_\alpha^* \equiv \frac{1}{\rho}\left(\phi_\alpha\gamma_\alpha + \frac{1-n}{n}\phi_\alpha^s\gamma_\alpha^s\right) \tag{11}$$

であり，固相，液相双方の湧き出し項をまとめたものである．式 (9) は任意の領域で成り立つので，局所形の方程式として

$$\left\{ R_d\frac{\partial c_a}{\partial t} + v_i\frac{\partial c_\alpha}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\tilde{D}_{ij}^{\alpha\beta}\frac{\partial c_\beta}{\partial x_j}\right) + \gamma_\alpha^* \right\} = 0 \tag{12}$$

が最終的に得られる．これは，湧き出し項のある移流-拡散方程式に他ならないが，拡散係数の異方性と核種間の相互作用が，有効拡散係数 $\tilde{D}_{ij}^{\alpha\beta}$ によって考慮しうるということに注意すべきである．

3. 均質化理論を適用した拡散方程式

前節で導出した移流-拡散方程式 (12) の初期値-境界値問題を考える．対象とする領域は Ω で，その境界は $\partial\Omega$ と表す．初期条件は,

$$c_\alpha(\boldsymbol{x}, 0) = 0, \quad (\boldsymbol{x} \in \bar{\Omega}) \tag{13}$$

で，境界の $\partial\Omega$ のうち $\partial\Omega_{c_\alpha}$ では Dirichlet 条件

$$c_\alpha(\boldsymbol{x}, t) \;=\; \hat{c}_\alpha(t), \quad (\boldsymbol{x} \in \partial\Omega_{c_\alpha}, t > 0) \tag{14}$$

が，$\partial\Omega_{q_\alpha}$ は Neumann 条件

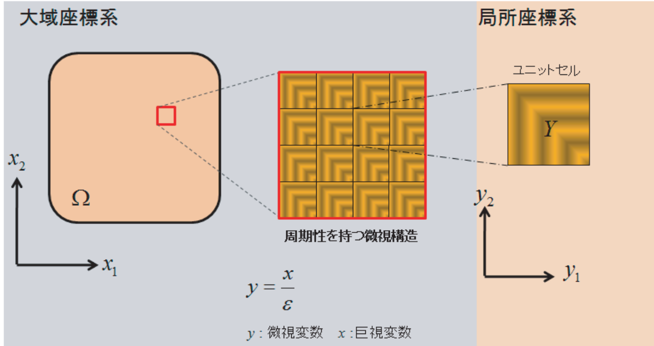
$$-\left(D_{ij}^{\alpha\beta}\right)\frac{\partial c_\beta}{\partial x_j}n_i \;=\; \hat{q}_\alpha(t), \quad (\boldsymbol{x} \in \partial\Omega_{q_\alpha}, t > 0) \tag{15}$$

が満足されるものとする．

3.1 均質化法解析

ここで，図 1 飽和多孔質媒体が周期的な微視構造を持つ場合について考える．微視構造の大きさを特徴づけるパラメータを ϵ, 微視構造を表現する代表領域を Y で表し，これをユニットセルと呼ぶ．ユニットセル内の局所座標を $\boldsymbol{y}$, 大域座標をこれまで通り $\boldsymbol{x}$ で表し，両者の間にはパラメータ ϵ を介して

$$\boldsymbol{y} = \frac{\boldsymbol{x}}{\epsilon} \tag{16}$$



図–1 均質化法における大域 (マクロ) および微視 (ミクロ) 構造の概念.

の関係があるものとして，$c_\alpha(\boldsymbol{x})$ を ϵ について次のように摂動展開する．

$$c_\alpha(\boldsymbol{x}, t) = \sum_{i=0}^{\infty} \epsilon^i c_\alpha^i(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{y}, t) \tag{17}$$

ここに，各 $c^i(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{y}, t)$ は $\boldsymbol{y}$ に関する周期関数で，周期はユニットセル Y の各座標軸方向の大きさによって定められる．式 (17) を式 (12) に代入して，ϵ の級数として整理し，各項の係数をゼロとおき, 次の関係を満たす特性関数 χ_k を導入する．

$$c_\alpha^1(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{y}, t) = -\chi_k(\boldsymbol{y})\frac{\partial c_\alpha^0(\boldsymbol{x}, t)}{\partial x_k} + C(\boldsymbol{x}) \tag{18}$$

すると,ϵ^{-1} の項は

$$\frac{\partial}{\partial y_i}\left[D_{ij}^{\alpha\beta}\left(\delta_{kj} - \frac{\partial \chi_k}{\partial y_j}\right)\right] = 0 \tag{19}$$

を満たす必要があることが分かり, これを，微視方程式と呼ぶ．最後に，ϵ^0 の各項を，ユニットセル上で

$$\langle\cdot\rangle \equiv \frac{1}{|Y|}\int_Y (\cdot)\, dv \tag{20}$$

の式に従い平均化すれば，左辺第 4 項はゼロとなる．残る左辺第 1 から 3 項に，特性関数を使った c_α^1 の表現を代入して整理すると，最終的には以下の式が得られる．

$$\frac{\partial c_\alpha^0}{\partial t} + \langle v_j\rangle\frac{\partial c_\alpha^0}{\partial x_j} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\left\langle D_{ij}^{\alpha\beta}\right\rangle\frac{\partial c_\beta^0}{\partial x_j}\right) - \langle\gamma_\alpha^*\rangle \;=\; 0 \tag{21}$$

ここに，$\langle v_j\rangle, \left\langle D_{ij}^{\alpha\beta}\right\rangle, \langle\gamma_\alpha^*\rangle$ は，以下の式で定義される均質化係数である．

$$\left\langle D_{ij}^{\alpha\beta}\right\rangle \;\equiv\; \frac{1}{|Y|}\int_Y D_{ik}^{\alpha\beta}\left(\delta_{kj} - \frac{\partial\chi_j}{\partial y_k}\right)d\boldsymbol{y} \tag{22}$$

$$\langle v_j\rangle \;\equiv\; \frac{1}{|Y|}\int_Y v_k\left(\delta_{kj} - \frac{\partial\chi_j}{\partial y_k}\right)d\boldsymbol{y} \tag{23}$$

$$\langle\gamma_\alpha^*\rangle \;\equiv\; \frac{1}{|Y|}\int_Y \gamma_\alpha^* d\boldsymbol{y} \tag{24}$$

以上より，微視方程式を周期境界条件の下で解き，特性関数 χ_k を求めれば，その結果を式 (22)〜(24) に用いて，均

質化係数が求まる．均質化係数が決まれば，式 (12) を初期条件，境界条件を踏まえて解くことができ，大域解 $c^0_\alpha(\boldsymbol{x},t)$ が求められる．さらに，大域解と特性関数を使えば，ユニットセル内の微視構造に起因する変動分を意味する摂動展開の１次項 $c^1_\alpha(\boldsymbol{x},\boldsymbol{y},t)$ も求められる．以上が均質化法解析の手順となる．

3.2 数値解析法

局所方程式，大域方程式を数値的に解くための方法に，特に制限は無いが，本研究では有限要素法を用いるため，各々の方程式の弱形式による定式化を以下に示しておく．

微視方程式　ユニットセル Y 上で定義される任意の $Y-$ *periodic* な試験関数を $V_i(\boldsymbol{x})$ とする．式 (19) の両辺にかけて，Y で積分する．さらに，ガウスの発散定理を用いて，$D^{\alpha\beta}_{ij}$ 等の周期性に注意すれば，

$$\int_Y D^{\alpha\beta}_{ij}\frac{\partial\chi^k_1}{\partial y_j}\frac{\partial V_k}{\partial y_i}d\boldsymbol{y} \;=\; \int_Y D^{\alpha\beta}_{ik}\frac{\partial V_k}{\partial y_i}d\boldsymbol{y} \qquad (25)$$

となる．この式を，適当な有限要素基底の空間において離散化して解けば，特性関数を数値的に求めることができる．

大域方程式　大域方程式の弱形式は，式 (12) の両辺に Dirichlet 境界 $\partial\Omega_{c_\alpha}$ 上でゼロとなる任意の関数 $V_i(\boldsymbol{x})$ を試験関数として乗じ，Ω 上で積分することで得られる．その結果は，

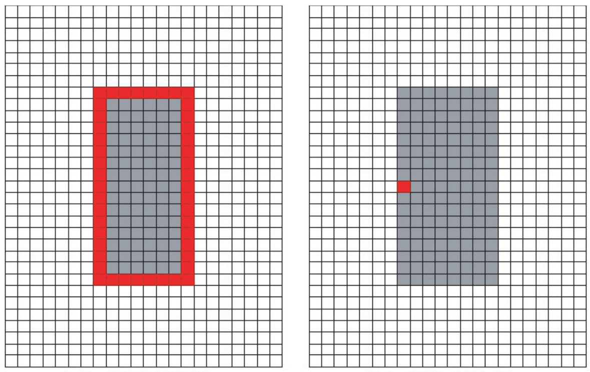
$$\int_\Omega\left(\frac{\partial c^0_\alpha}{\partial t}+\langle v_i\rangle\frac{\partial c^0_\alpha}{\partial x_i}+\gamma^*_\alpha\right)V_k(x)dv + \int_\Omega\left\langle\tilde{D}^{\alpha\beta}_{ij}\right\rangle\frac{\partial c^0_\alpha}{\partial x_j}\frac{\partial V_k}{\partial x_i}dv=\int_{\partial\Omega_{C_\alpha}}\hat{q}_\alpha V_k ds \quad (26)$$

の通りであり，c^0_α の有限要素基底で離散化し，上の式を用いれば，有限要素基底が張る空間で近似解を求めることができる．

4. 数値解析例

4.1 解析モデル

高レベル放射性廃棄物の地層処分を実現するには，バリアシステムの安全性を適切に評価することが必要である．バリアシステムによる核種移行の遅延効果は、通常の工学システムと異なり，対象とする全時間・空間領域にわたって安全性を直接確認することができない．そのため、地層処分システムの将来挙動に関するシナリオを描き，現象に忠実なモデルを構築し，現実的条件で取得された信頼性の高いデータを整えて影響解析を行う方法が考えられている．地層処分システムの将来挙動について想定される主要なシナリオは，地下水により鋼製オーバーパックが徐々に腐食するとともに、内部のガラス固化体が熱膨張による変形を拘束された結果破壊し、その結果, 地下水に溶出した放射性核種が緩衝材や岩盤を経て人間の生活環境である地表に運ばれるという地下水シナリオである．このようなシナリオを踏まえ、ここでは，オーバーパックの全面で腐食が進行し，内部の放射性核種が溶出する場合 (全面腐食) と，孔食によりオーバーパックの一部が破損して局所的に溶出が起こる部分腐食モデルの二通りについてシミュレーションを行った (図 2 を参照)．また，微視構造としては，ユニットセル内に, 物質の拡散経路をイメージした拡散係数の大きい領域を設け，ユニットセル内では非均質な拡散係数となっているとの仮定に基づき特性関数を求めることとした．以下では，本研究で取り上げた微視構造を最初に示し，次に，各々の微視構造に対して求められた均質化係数示す．続いて，大域方程式である拡散方程式を，均質化係数を導入して解くことで，微視構造を考慮した拡散解析を行った結果とその考察を述べる．なお，ここでは，簡単のため移流項は無視しており，また，紙面の都合上結果は全面腐食の場合についてのみ示す．



図–2　マクロ解析モデル. 網掛けした部分がオーバーパックを、黒く塗りつぶした部分が腐食によるり溶出が起こると仮定した箇所を示す.

4.2 ミクロスケール解析

物質移動の経路となる間隙構造の複雑さの程度は, 実効拡散係数に大きく影響することが知られている． このような経路の影響は、均質化法ではユニットセルのモデルを用いて直接計算することができる。図 3 に, 今回のシミュレーションに用いたユニットセルのモデルを示す．この図は、セル内のミクロ拡散係数の分布を示したもので、色の薄い部分が、ミクロ拡散係数の大きな部分を表している．typeA、typeB は、等方的な均質化拡散係数をもつことを、typeC から typeF は、異方性を示すことを期待して考案したものである．各々のモデルに対して, 前節で述べた弱形式の定式化に基づく有限要素解析を行い, 特性関数を決定し, その結果を使って、マクロな拡散係数を求めたところ、表 1 のようになった．D^H_{11} は図 3 中の横方向、D^H_{22} は縦方向の実効拡散係数である. まず、typeA と typeB を比較すると, どちらも等方性を有するので, D^H_{11}、D^H_{22} はそれ

ぞれ同様の値を示しているが, typeB は経路に屈曲があるので、typeA に比べ小さい値となっている.typeC については、経路が途中で途切れているものを用いたが若干の変化が見られるだけであった。typeD,typeE については横方向の経路を増やし、異方性を強く持たせたモデルであり, 実効拡散係数は、やはり D_{11}^H が大きくなる.typeF についても, 経路の本数は同様であるが, 横方向に屈曲を持たせた分だけ小さくなる. また、全モデルにおいて非対角項の値は非常に小さく無視できるものとした.

4.4 マクロスケール解析

ここでは、図 2(a) に示した、全面腐食モデルによる拡散解析結果を示す. 図 4 は、ユニットセル A を使って、計算した拡散解析の結果である. 拡散係数が等方的であるため、いずれの方向にもほぼ同程度のペースで拡散が進行している様子が分かる. 次に、図 5 にユニットセル E に対する結果を示す. この場合は、水平方向の拡散係数が大きいために、オーバーパック左右面からの拡散がより早く進行し, 時間が経過するにつれて拡散係数が小さい鉛直方向に高濃度の部分が広がる様子が見られる.

5. まとめ

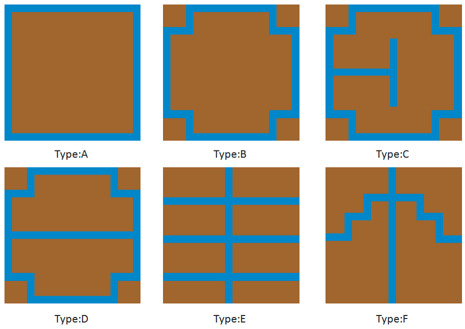
本研究では、高レベル放射性廃棄物地層処分の安全性評価を行うために必須の要素技術である、複数放射性核種の拡散問題を, 拡散媒体のミクロ構造を反映した形で扱うことができるよう、均質化理論による定式化を示し、有限要素解析によりその数値解析例を示した. 拡散問題の定式化においては、飽和多孔質媒体における質量保存則と Fick 則から、移流-拡散方程式が導出されることを示し、さらに均質化理論を適用することで、ミクロ拡散係数をマクロのそれにアップスケールする方法を示した. また、数値解析例を通して、拡散係数のミクロスケールにおける分布が、マクロな拡散係数の異方性として反映されることをを示した. さらに、均質化された拡散方程式を解くことで、マクロレベルでの解析結果においても、拡散場が無視できない異方性を示すことを明らかにした. 今後は、複数の核種が相互作用をする場合の拡散挙動を明らかにすること、分子動力学計算より得られた拡散係数を使ったシミュレーションを行うこと、現実的なミクロ流速場の設定とそれに基づく均質化された移流-拡散方程式の解析等が課題である.

参考文献

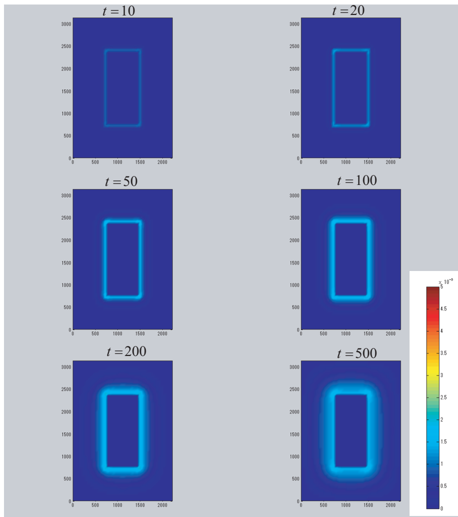
1) 市川 康明, 橘 翔子, 崔 定海, a. p. s. selvadurai: " 飽和多孔質帯における多成分混合溶液の拡散・浸透・圧密問題の新展開 "材料, vol. 59, no. 3, pp.227-230 (2010) .
2) Jacob bear,arnold verruijt: " mdeling groundwater flow and pollution "d.reidel publishing company,1987
3) Jacob bear: " dynamics of fluids in porous media "dover books on physics and chemistry,1972
4) 日本計算工学会　編, 寺田賢二郎、菊池昇, " 計算力学レクチャーシリーズ　　均質化法入門 "丸善株式会社,2003
5) 市川康明, 多孔質物体の輸送現象-微視と巨視の世界-,2010

表–1　ミクロモデル均質化解析結果

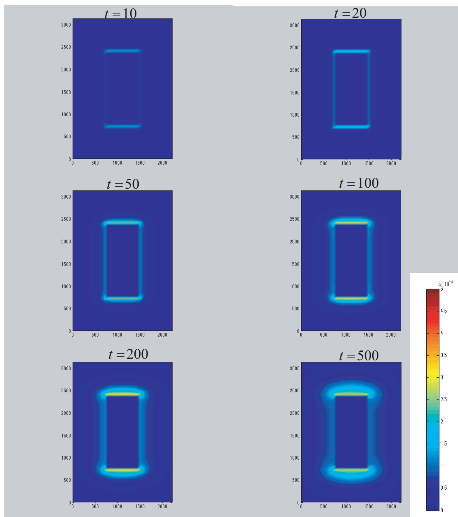
ユニットセル	A	B	C	D	E	F
$D^0[m^2/s]$	$2.4E-9$					
$\langle D_{11}\rangle$E-10$[m^2/s]$	1.53	1.31	1.31	2.08	2.28	0.50
$\langle D_{22}\rangle$E-10$[m^2/s]$	1.53	1.31	1.30	1.32	0.78	0.76



図–3　ユニットセルのモデル.



図–4　全面腐食 typeA



図–5　全面腐食 typeE