論文

放射性廃棄物地層処分システムにおける物質移動と 遅延効果の不均一性*

新堀 雄一¹ 朽山 修¹ 千田 信²

Heterogeneity of the Retardation Effect and Mass Transport in Geological Disposal System of Radioactive Wastes

by Yuichi NIIBORI^a, Osamu TOCHIYAMA^a and Tadashi CHIDA^b

a. Dept. of Quantum Science and Energy Engineering, Graduate School of Engineering, Tohoku University,
Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

b. Dept. of Geoscience and Technology, Graduate School of Engineering, Tohoku University

The relation between the mass transport rate and the spatial distribution of retardation coefficient, R_d , has been examined by using two-dimensional (2-D), advection-dispersion model. In the calculated breakthrough curves, this study focused on the peak height and its arrival time. To compare them easily, the dimensionless mean residence time was always set at unity. In the results, as the R_d values were distributed perpendicular to the flow direction, the peak height and its arrival time strongly depended on the R_d distribution. This study, for simplicity, considered two kinds of R_d layers and assumed that the small R_d and the large were arranged parallel to one another. The smaller the alternation frequency of the layers became, the higher peak and the shorter arrival-time the breakthrough curve showed. In contrast, when the frequency was large enough, the peak-arrival time almost agreed with the homogeneous case. Further, this study confirmed that the variation of the skewness of R_d had no appreciable influence on the whole mass transport rate. When the 2-D distribution of R_d was described by, e.g., log-normal distribution, the average mass transport rates showed agreement with those on the other probability density functions defined by the same set of the arithmetic mean and the standard deviation of R_d . These tendencies mentioned above were confirmed in the range of Peclet number from 10 to 10^2 for the dimensionless standard deviation at least up to around 1.

KEY WORDS : Geological Disposal System, High Level Radioactive Waste, Retardation Effects, Spatial Variability, Two-dimensional Model.

1. 緒 言

高レベル放射性廃棄物は長半減期核種を含むため、その地層処分においては天然バリアの性能評価が大変重要となる(たとえば、小出, 1990; 安ら, 1995)。1999年11月、核燃料サイクル開発機構はこれまでの研究開発の成果を取りまとめた技術報告書をまとめた(JNC, 1999)。また、米国ではDOE(1998)が、Yucca Mountainの処分場の実現可能性についての評価レポートを示している。両者はサイトを特定していない場合としている場合とに大別できるが、処分場の安全評価や性能評価をより精度を上げる観点から、天然バリアの持つ不確実性への取り組みが今後の共通課題である。周知のように、地下は多様な要素からなり、それらをすべて把握し、かつ要素間の相互の関係を定量的に評価することは困難である。従来、要素のあるいは局所的な現象の検討があり、個々の知見は貴重なものであるが、場合によっては、様々な現象が指摘されることにより、それがあたかもシステム全体の挙動と錯覚される傾向も否定できない。それゆえ、処分場の安全評価、性能評価の視点から無視できる不均一性とシステムに大きな影響を及

ぼす不均一性を区別することが重要になる。

従来、個々の鉱物を取り上げ、それと長半減期核種との収着挙動が検討されている。また、直接、岩石を用いて着目する核種との相互作用を検討している例もある。これらの結果は、いわゆる収着分配係数 K_d に集約される(大江, 1995)。核種移行に及ぼす収着の効果は、地下水流動に比較して、核種の移行速度が遅くなる効果(遅延効果)であり、 K_d を移流-拡散モデルに組み込み、遅延効果を係数として定量化するのが一般的である(朽山ら, 1998)。その係数は遅延係数と呼ばれる。一方、近年、着目されている現象の一つに亀裂内充填物と核種との相互作用がある(たとえば、DOE, 1998)。無論、岩石中の亀裂が第一に問題になるのは地下水の流路としての役割であるが、流路となる場合、地下の圧力、温度の変化により地下水から析出した固相と、核種との相互作用についても検討を必要とする。亀裂内充填物の分布は局所的な地下水の流動にも依存するため、亀裂内の遅延係数は、局所的な浸透率と同様、一様に分布していない。従来、浸透性の不均一性と物質移行との関係についてはいくつかの試みがある(Smith and Schwartz, 1980; 新堀ら, 1985; Y.W.Tsang et al., 1988; Moreno et al., 1988, 1990; C.F.Tsang et al., 1991; Nordqvist et al., 1992; Gylling et al., 1995; Chesnut, 1995; Mukhopadhyay and Cushman, 1997; Niibori and Chida, 1994; Niibori et al., 1997, 1999; Wen and Gomez-Hernandez, 1998)。また、 K_d に基づく遅延効果の不均一性と物質移行との関係についてはDelay et al.(1997)が、空間的に遅

* 2001年4月6日受付 6月29日受理

1. 正会員 工博 東北大学助教授 工学研究科量子エネルギー工学専攻

2. 理博 東北大学助教授 工学研究科量子エネルギー工学専攻

3. 正会員 工博 東北大学教授 工学研究科地球工学専攻

[著者連絡先] FAX 022-217-6338 (東北大・量子エネルギー)

キーワード: 地層処分システム, 高レベル放射性廃棄物, 遅延効果, 不均一性, 2次元モデル

遅延係数が異なる媒体においても、それらを構成する個々の遅延係数を用いれば核種移行の予測が可能であることをカラム(1次元)の実験の解析から示した。また、広城(1999)は、カラム実験において、陽イオン交換容量の空間分布を考慮した陽イオン輸送解析を行った。その結果、実験値と提案した数学モデルによる計算結果とはよく一致することを示した。一方、上田(1999)は六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターの支持地盤について K_d 値を測定し、その空間分布が対数正規分布に従っていることを示している。

以上述べたように、遅延効果の空間分布については現在のところ1次元での検討がなされており、2次元での検討はみられないようである。また、 K_d のデータが対数正規分布に従うことが報告されているが、地圏環境の解析では地下のすべての不均一性を考慮することは不可能であり、限定された範囲でさえ何らかの平均化を要する。そこで本研究では、2次元の数値実験により、空間的に遅延係数が一様でない場合における物質移行を検討し、系全体の物質の移行速度を左右する分布を整理する。また、遅延係数の空間分布が層状などのように限定されず、その値がある確率密度関数に従うと見なされる場合、その応答は遅延係数の算術平均値によって系の代表値とする方が、幾何平均を用いるよりも(仮にその確率密度関数が対数正規分布に近似される場合においても)、実際の移行速度を反映することを示す。

2. 数学モデル

2・1 問題設定

我が国の地層処分についての現状は、サイトを特定して考える前の段階であり、一般論としての検討が必要になる。そこで、単純ないくつかの場合を考えてみる。Fig.1に本研究における問題設定の概略図を示す。ここで、図中の矢印は流れの方向を示し、地下水により飽和された領域 $0 \leq X \leq 1$, $0 \leq Y \leq 1$ において、流体は $X=0$ から一様に流入し、 $X=1$ から流出する。Fig.1(a)は流れ方向に対して並列(垂直)に遅延係数が分布する場合である。Fig.1(b)は直列に分布する場合であり、この場合については前述の通り既に検討がなされている。Fig.1(c)は(a)や(b)のような層状であるという制約を外した場合である。このような系に流れに従ってインパルス状に核種を注入し、出口における応答を数値実験により得、応答と遅延係数の分布との関係を考察する。

Fig.1に示すように、流れの方向を限定し、矩形の領域について不均一性を検討する手法はSmith and Schwartz(1980)により提案され、前述のようにその後も、系全体の浸透性や物質移行の評価に用いられてきた。本来、遅延係数と浸透性の分布は各々存在するが、浸透性の分布のみを扱った検討が従来からなされており、本研究では遅延係数に絞って知見を得る。基礎方程式、初期条件、境界条件および物質の注入の条件についての詳細は後述する。

2・2 遅延係数の定義

遅延係数 R_d は一般に次のように定義される。

$$R_d = 1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho_s K_d \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで ε は空隙率、 ρ_s は固相密度(kg/m^3)、そして、 K_d は分配係数(m^3/kg)である。 K_d を用いて吸着現象を表すモデルは、 K_d モデルと呼ばれ、処分場から放出された場合を想定した核種の移行速度を表すためにしばしば使われている。ただし、分配係数を導入し得る前提には、分配に要する時間が移流や混合拡散(分散)などによる物質移行に比較して十分短く、平衡と見なし得る場合であり、この吸着モデルはいわゆるHenry型の平衡式となっている。また、Skagius and Neretnieks(1988)はこの他にFreundlichやLangmuirの等温吸着式を適用する場合を検討している。一方、液相と固相

Fig.1 Illustration of retardation distributions considered in this study.
(a) Layered model (two-dimensional against flow direction),
(b) Layered model (one-dimensional against flow direction),
(c) Random model.)

間での吸着、脱着の速度を考えなければならない場合もある。 K_d のようなパラメータを用いた線形な平衡モデルは、固相の吸着能力(最大吸着量)に比較して着目している核種の濃度が十分に小さい場合、簡便なモデルとして広く使われ、吸着した核種の固相表面や内部における拡散は無視される。

2・3 基礎方程式

ここでは前述したように2次元の飽和領域(X 軸と Y 軸について各々の区間 $[0, 1]$)を考える。移行速度に着目するため核種の壊変を無視する(Niibori et al., 1997)。 K_d に基づく遅延係数 R_d を考慮した2次元の移流-拡散方程式の一般式はHuyakorn and Pinder (1983)を参考にすれば次のように表される。

$$\bar{R}_d \frac{\partial C}{\partial T} = \frac{1}{Pe} \left\{ \bar{D}_{XX} \frac{\partial C}{\partial X} + \bar{D}_{XY} \frac{\partial C}{\partial Y} \right\} + \frac{\partial}{\partial Y} \left\{ \bar{D}_{YY} \frac{\partial C}{\partial Y} + \bar{D}_{YX} \frac{\partial C}{\partial X} \right\} - \left(U \frac{\partial C}{\partial X} + V \frac{\partial C}{\partial Y} \right) \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$\bar{R}_d = \frac{R_d}{R_d^*}, \quad R_d^* = \int_0^1 \int_0^1 R_d f(R_d) dX dY \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで $\bar{R}_d$ は遅延係数の算術平均値 R_d^* を遅延係数の代表値として正規化した係数である。また、 $\bar{R}_d$ 以外の式(2)における無次元数を次のように定義する。

$$X = \frac{x}{x_1}, \quad Y = \frac{y}{x_1}, \quad C = \frac{c}{c^*}, \quad T = \frac{t}{t^*}, \quad t^* = \frac{\varepsilon x_1 R_d^*}{u^*}, \quad Pe = \frac{x_1 u^*}{D_c},$$

$$U = \frac{u}{u^*}, \quad V = \frac{v}{u^*}, \quad \bar{D}_{XX} = \frac{D_{xx}}{D_c}, \quad \bar{D}_{XY} = \frac{D_{xy}}{D_c}, \quad \bar{D}_{YY} = \frac{D_{yy}}{D_c},$$

$$\bar{D}_{YX} = \frac{D_{yx}}{D_c} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで x_1 は着目領域における x 方向の距離(m)を示し、扱う領域の代表長さとする。また、 t は時間(s)、 t^* は R_d の算術平均値 R_d^* を遅延係数の代表値とした場合の核種の平均滞在時間、 u および v は各々 x 方向および y 方向の流体流速(m/s)、 u^* は代表流速(m/s)、 c は着目した核種の濃度(kg/m^3)、 c^* はこの系に注入される際の核種濃度(kg/m^3)、 D_c は混合拡散係数の代表値(m^2/s)、 D_{xx} 、 D_{xy} 、 D_{yy} および D_{yx} は各成分の混合拡散係数(m^2/s)ある。これら混合拡散係数と流速の関係は2次元での検討は少ないが、最近、新堀ら(1994)や楊ら(1998)は、平板(2次元)充填層を用いて実験と計算結果を比較検討し、移流項が拡散項に比較して大きい場合($Pe \geq 10$ 程度)では、式(2)を式(5)により単純化し、応答曲線を表し得ることを示している。

$$\bar{R}_d \frac{\partial C}{\partial T} = \frac{1}{Pe} \left(\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2} \right) - \left(U \frac{\partial C}{\partial X} + V \frac{\partial C}{\partial Y} \right) \quad \dots\dots\dots (5)$$

そこで、本研究では基本的には式(5)を数値的に解き、混合拡散の異方性についての考察を加えるものとする。

一方、境界条件については、入り口についてはclosed vessel境界条件(Levenspiel, 1972; PNC, 1992)を与え、核種の注入($X=0$)については無次元時間 T_{in} を用いて、 $0 \leq T \leq T_{in}$ において $C=1$ 、 T_{in}

$\leq T$ において $C=0$ とする。また、 $Y=0$ および $Y=1$ では、 Y 方向に流れがなく ($V=0$, 式 (5) 右辺第 4 項は 0) かつ濃度勾配 $\partial C / \partial Y = 0$ を仮定する。一方、出口においては $\partial C / \partial X = 0$ と仮定する。なお、 X 方向の流れについては、 X 方向における圧力勾配を一定とし、その際の流速を代表流速 u^* とすることにより、無次元流速 U に 1 を与える。

以上の方程式を差分法により解き数値解を得る。移流項は数値分散を防ぐために三次精度により離散化した (Haga et al., 1999)。また、離散時間 ΔT は 10^{-4} とし、差分格子は 2 次元に対して X 方向、 Y 方向に各々 150 設けた。また、物質の移動速度をインパルス応答として表すためには、解析上、 $X=0$ において δ -関数を入力する必要があるが、数値計算ではそのような入力にはできない。そこで、十分小さい時間 ($0 \leq T \leq T_{in}$)、物質濃度を注入し、その際の出口における応答を式 (6) のように正規化し擬似的なインパルス応答を得る。

$$\bar{C} = \frac{\int_0^{T_{in}} U_{X=1} C_{X=1} dY}{\int_0^{T_{in}} \int_0^1 U_{X=0} C_{in} dY dT} \quad \dots\dots\dots (6)$$

ここで C_{in} は無次元の注入濃度であり式 (4) の定義により 1 となる。また、 $X=0$ の無次元流速 U は前述のように本研究では 1 である。すなわち、式 (6) の分母は注入した物質量を意味する。 T_{in} の値は、解析解と数値解との比較および正規化応答に及ぼす核種注入時間の影響を調べ、十分小さい値として 0.01 を用いた (Niibori et al., 1995)。

Fig.1(c) の場合、確率密度関数と乱数を用いて遅延係数の空間分布を表す。その場合は、 n 回の試行回数により次式を基に出口から得られる平均の応答 $\bar{C}$ を求める。

$$\bar{C} = \frac{\sum_{i=1}^n \bar{C}_i}{\sum_{i=1}^n \int_0^\infty \bar{C}_i dT}, \left(\sum_{i=1}^n \int_0^\infty \bar{C}_i dT = n, \int_0^\infty \bar{C} dT = 1 \right) \quad \dots\dots\dots (7)$$

なお、試行回数 n については 2・4 に述べる。

2・4 分布の設定

本研究では、先に Fig.1 に示した遅延係数の空間分布を考える。まず、Fig.1(a) に示す層状の分布について、簡単に 2 種類の遅延係数 (大きな遅延係数 $\bar{R}_{dl}$ とそれより小さい遅延係数 $\bar{R}_{ds}$) を想定する。このような分布は、亀裂面上において局所的な流路の周りに析出物が存在している場合を最も単純化したものとも考えることができる。無論、析出物の存在により存在していないところとは浸透率や空隙率が実際は異なるが、前述のように、透水性の空間分布については既に検討があり、それとは分離し、遅延効果の不均一性にのみ着目する。

Fig.1(b) については 1 次元の問題であり、既にいくつかの検討がある。Delay et al.(1997) では複数の遅延係数が流れに対して直列に配列している場合、1 つの遅延係数と見なせる領域の破過応答を次の遅延係数を持つ領域の入力波形とすることにより系全体の遅延効果を表し得ることを示した。遅延係数の異なる層が接する面の存在は、物質の移動に影響を及ぼすと考えられるが、Delay et al.(1997) の取り扱った実験範囲においてはその効果は小さいものであった。本研究では 2 次元の問題である Fig.1(a) や (c) の場合について力点を置いて考察する。

なお、与えた遅延係数の値は時間によって変化することはないと仮定する。母岩の変質など、長期にわたる核種移行では無視できない場合も想定され、変質についての研究もなされているが (たとえば、DOE, 1998 ; Nagano et al., 1994 ; Niibori et al., 2000 ; 守屋ら, 2000), ここではそのような効果を無視し、着目している

時間内においては一定と見なし得る遅延係数により各層を特徴付ける。

Fig.1(c) の場合については、確率密度関数に基づいて様々な $\bar{R}_d$ の分布を発生させ、その分布と物質の移動との関係について検討する。上田 (1999) の例では、遅延係数の空間分布を表す確率密度関数として対数正規分布を提案しているが、實際上、局所の遅延係数がある特定の確率密度関数により表現するのは難しい。そこで、本研究ではいくつかの確率密度関数を想定して分布を考えてみる。本研究では対数正規分布のほかにベルヌーイ試行列、ベータ分布を仮定する。Niibori et al.(1997,1999) では浸透性の 2 次元空間分布を想定し、種々の確率密度関数を用いて物質の移動速度を検討している。その結果、系全体の物質の移動は、確率密度関数の種類にはよらず、浸透率の算術平均値、標準偏差および歪度といった統計量により特徴付けられることを示した。本研究では、遅延係数の 2 次元分布についてこれと同様な視点から検討する。

確率密度関数 $f(R_d)$ を用いる場合は、対象領域を X 方向および Y 方向に各々 n_X および n_Y 個に分割し、 $n_X \times n_Y$ のセルを設ける。本研究では $n_X = 30$, $n_Y = 30$ とし、 $f(R_d)$ および一様擬乱数により各セルに R_d を設定する。なお、共分散を考慮することも理論的には考えられるが、たとえば、花崗岩を構成する複数の鉱物の配列を想定すると、必ずしも連続的な共分散関数は適さない場合もあり、いかなる関数とするか今後の課題となる。本研究では、 R_d の頻度について確率密度関数を適用し、共分散を考慮していない。さらに、各セル内においては R_d の値は一樣であり、前述のように時間による変化はないものとする。試行回数 n はあらかじめ $\bar{C}$ と n との関係調べ、 $n_X = 30$, $n_Y = 30$ の場合は $n = 10$ において $\bar{C}$ は収束することを確認した。そこで本研究では $n = 10$ とする。

3. 計算結果および考察

Fig.2 に Fig.1(a) に示した遅延係数のいくつかの例を Cases I, II および III として示す。Fig.3(a) はそれらの応答である。ここで横

Fig.2 Some samples of the distributions of retardation effects. (Case I: Two layers, Case II: Four layers, the same distribution as Fig.1 (a), Case III: Ten layers.)

Fig.3 Breakthrough curves through some layered distributions of $\bar{R}_d$ (Peclet number = 10). (The layer configuration of Case I in the figure (a) is equal to Case I in the figure (b). Case I* and I** are same as Fig.1(b). Case I : $\bar{R}_d = \bar{R}_{dl}$ in $0 \leq Y \leq 0.5$, and $\bar{R}_d = \bar{R}_{ds}$ in $0.5 < Y \leq 1$, Case I* : $\bar{R}_d = \bar{R}_{dl}$ in $0 \leq X \leq 0.5$, and $\bar{R}_d = \bar{R}_{ds}$ in $0.5 < X \leq 1$, Case I** : $\bar{R}_d = \bar{R}_{ds}$ in $0 \leq X \leq 0.5$ and $\bar{R}_d = \bar{R}_{dl}$ in $0.5 < X \leq 1$.)

値 R_d^* が系に様に分布している場合の物質の平均滞在時間を代表時間としている。また、縦軸は、式(6)に定義した正規化濃度であり、定義した無次元時間により濃度を積分した際に面積は1となる。この図から分かるように、遅延係数が流れの方向に垂直に分布している場合、応答のピークの高さとその出口到達時間は強く R_d の分布に依存する。すなわち、Case Iのように層の頻度が小さいと、2つのピークが現れ、第一のピークは相対的に高い。しかし、Case IIIのように層の頻度が大きくなると、Case IやCase IIに見られた最初のピークは消失し、遅延係数が様に分布している場合に近い応答になる。Fig.3(b)はCase Iの場合(X方向に遅延係数は一様で $0 \leq Y \leq 0.5$ において $\bar{R}_d = \bar{R}_{ds}$ 、 $0.5 < Y \leq 1$ において $\bar{R}_d = \bar{R}_{dl}$)に比較するために、Fig.1(b)に相当する次の2つの場合を考えた。Case I*はY方向に一様で、 $0 \leq X \leq 0.5$ において $\bar{R}_d = \bar{R}_{dl}$ 、 $0.5 < X \leq 1$ において $\bar{R}_d = \bar{R}_{ds}$ の場合、Case I**は逆に、 $0 \leq X \leq 0.5$ において $\bar{R}_d = \bar{R}_{ds}$ 、 $0.5 < X \leq 1$ において $\bar{R}_d = \bar{R}_{dl}$ の場合である。Case I*とCase I**はほぼ均質の場合の応答に一致する。このことは一見当然のように思えるが、バルク中の濃度は層を境にして遅延係数に従って変化し、その変化はCase I*とCase I**とは異なる。しかし、その寄与は小さく、Fig.3(b)の結果はDelay et al. (1997)の実験結果を支持している。また、Fig.3(b)に示すように $\bar{R}_{dl}$ の値と $\bar{R}_{ds}$ の値が算術平均値(=1)に近くなると(図中 $\bar{R}_{dl}=1.5$ 、 $\bar{R}_{ds}=0.5$ の場合)、応答は均一な場合に近くなる。すなわち、応答は $\bar{R}_d$ の標準偏差にも大きく依存する。なお、Fig.3の結果はペクレ数(Pe)を10としたものである。この値は亀裂内のトレーサー試験の解析から過去に評価された値にほぼ等しい(Niibori et al., 1995)。

Fig.4は $Pe=10^2$ とした場合である。Fig.3(a)に比較して、Case I, IIおよびIIIは明らかに均一な場合と異なる。しかし、層が細くなるに従い、Case IやCase IIに見られた第一のピークはCase IIIでは消失していく傾向が分かる。層間における混合拡散は遅延効果によってバルク内の物質の濃度を変化させ、混合を促進させる。

混合拡散係数の異方性について、X方向の流れしかない場合、Huyakorn and Pinder (1983)に従えば、Y方向の混合拡散係数(分散係数) D_{YY} はY方向の分散長とX方向の流速の絶対値にほぼ比例し、 D_{XY} と D_{YX} は0となる。また、Y方向の分散長はX方向の分散長の0.1倍であることを室内実験より得た例がある(中川ら, 1998)。その場合は、X方向に $Pe=10$ 、Y方向に $Pe=10^2$ を与えたことに相当する。混合拡散係数にそのような異方性がある場合もFig.3やFig.4と同様な傾向を示すことを確認した。一方、下田ら(2001)の実験によると浸透率がほぼ等しい場合でも、二次空隙をもつ層と持たない層が流れの方向(X方向)に垂直に存在する場合のY方向の混合拡散係数は、均質な場合に比較して大きくなる傾向を示し、結果的に式(5)により応答を表した。したがって、異

Fig.4 Breakthrough curves for Peclet number = 10^2 .
(The distributions of $\bar{R}_d$ are same as Fig.3(a).)

なる媒体の接合面でのY方向の混合拡散については未だ議論の余地があるものの、Fig.3およびFig.4より、Fig.1(a)や(b)のような分布についての物質移行の傾向をおおよそ把握できる。すなわち、物質の固相との相互作用が流れの方向に垂直に変化する場合、その頻度が着目する系全体の大きさに比べ小さいと、応答は遅延係数が様に分布した際のものとは大きく異なる。その傾向は、遅延係数の標準偏差および局所の混合拡散係数に依存する。

次に、確率密度関数を用いてFig.1(c)の場合について検討する。種々の確率密度関数を適用する場合に注意しなければならないことは、その積分範囲である。たとえば、対数正規分布の積分範囲は0から無限大であるが、遅延係数はその定義により $R_d \geq 1$ の制約を持つ。したがって、対数正規分布のような連続な確率密度関数を直接、遅延係数の頻度分布として用いることはできない(実際のデータがそのような形をとっても遅延係数の定義により制約を受ける)。しかし、遅延係数の算術平均値 R_d^* が、分布の中で最小の遅延係数 R_{dmin} に比較して十分に大きい場合は、正規化した場合の最小の遅延係数 $\bar{R}_{dmin}$ はほぼ0に近似できる。いま、 $\bar{R}_d$ の標準偏差 σ は次のように表される。

$$\sigma^2 = \int_{\bar{R}_{dmin}}^{\infty} F(\bar{R}_d)(\bar{R}_d - \bar{R}_{dA})^2 d\bar{R}_d \quad (8)$$

ここで、 F は $\bar{R}_d$ の確率密度関数、 $\bar{R}_{dA}$ は $\bar{R}_d$ の算術平均値であり式(3)の定義により常に1である。一方、正規化されていない R_{dmin} の理論上の下限値は、遅延しない場合、すなわち、1であり、その値を正規化した値 $\bar{R}_{dmin} (= 1/R_d^*)$ で表すと、 $R_d^* \gg 1$ のときは $\bar{R}_{dmin}$ はほぼ0となる。例えば、空隙率 ε および固相の密度 ρ_s をそれぞれ0.1と $2.5 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ とし、 K_d が0.01から0.25 m^3/kg の範囲にある場合(実際PNC(1992)はネプツニウムNpの花崗岩への収着係数をこのように報告している)において、その範囲で遅延係数の空間分布の算術平均値が定まるとすると R_d^* は250から6,250にある。この中で小さい方の250を R_d^* としても、 $\bar{R}_{dmin}$ は 4×10^{-3} となり、 $\bar{R}_{dA}(=1)$ に比較してほぼ0と見なすことができる。

本研究では前述のように確率密度関数の種類を特定するのではなく、いくつかの確率密度関数を用いて検討する。我々はあるデータの得たとき少なくとも求めることができる統計量は算術平均値、標準偏差といったモーメントである。そこで、それらのモーメントと確率密度関数の持つ固有のパラメータとの関係をあらかじめ調べ、同じ統計量を持つ確率密度関数の種類は異なる場合を考える。これにより各々の確率密度関数を用いて分布を発生させ、そこから得られる応答は確率密度関数の種類にほとんど左右されないことを示す。また、実験値の整理に一般的に用いられる統計量のうち、算術平均値、標準偏差、歪度などはいわば、 n 次のモーメントで $n=1, 2$ そして3を反映しているから、どこまでのモーメントによりその系全体の特性を近似できるかを検討する。言い換えれば、もし、算術平均値のみによって十分に系の特性を近似できれば、特定の確率密度関数に実験値を近似する作業は厳密に行う必要がない。

Fig.5はいくつかの確率密度関数について算術平均値を1とした場合の標準偏差 σ と歪度 S_k との関係を示したものである。ここで歪度は次式により定義される。

$$S_k = \frac{\int_{\bar{R}_{dmin}}^{\infty} F(\bar{R}_d)(\bar{R}_d - \bar{R}_{dA})^3 d\bar{R}_d}{\sigma^3} \quad (9)$$

本研究では $\bar{R}_{dmin} \approx 0$ を仮定する。Fig.5の見方について次のように説明する。いま、対数正規分布は2つの独立したパラメータを持つ。ゆえに、これらの値が決まればその密度関数は特定される。一般に、対数正規分布のパラメータは $\log \bar{R}_d$ の算術平均値と標準

Fig.5 Relation of skewness to standard deviation in normalized retardation coefficient for lognormal distribution, Beta distribution and Bernoulli trials.

偏差になる。ここでは、様々な確率密度関数を用いるため、 $\log \bar{R}_d$ ではなく $\bar{R}_d$ の算術平均値を1と固定した。したがって、 $\bar{R}_d$ の標準偏差 σ (これも $\bar{R}_d$ を変数とする)が決まれば、2つの値が決まり、結果的にその関数を特定できる。その際の歪度は式(9)に従い求めることができる。つまり、対数正規分布では、算術平均値と標準偏差が決まれば、歪度は一意に定まる。一方、パラメータが3つの確率密度関数は算術平均値と標準偏差が決まっても歪度はある幅を持つ。一例として離散型の確率密度関数であるベルヌーイ試行列 $F_{\text{Ber}}(\bar{R}_d)$ を取り上げる。この関数は式(10)に示すように3つの値により決定される。

$$F_{\text{Ber}}(\bar{R}_d) = f_r \delta(\bar{R}_d - \bar{R}_{dS}) + (1 - f_r) \delta(\bar{R}_d - \bar{R}_{dL}) \quad (10)$$

ここで、 δ はデルタ関数、 $\bar{R}_{dS}$ は小さい遅延係数であり、 $\bar{R}_{dL}$ はそれより大きな値である。また、 f_r は $\bar{R}_d$ として $\bar{R}_{dS}$ を取り得る分率で、 $1 - f_r$ は $\bar{R}_{dL}$ を取る分率である。これら3つの値 $\bar{R}_{dS}$ 、 $\bar{R}_{dL}$ および f_r は、別の3つの値で置き換えることができる。本研究では、それを算術平均値 $\bar{R}_{dA}$ 、標準偏差 σ および歪度 S_k とし、これらのパラメータの関係を求める。さらに、変数である $\bar{R}_d$ は物理的な制約条件を持つため、自ずと統計量の取り得る値も制約される。すなわち、算術平均値 $\bar{R}_{dA}$ は常に1であり、 $\bar{R}_d$ は0より大きいため、この場合のベルヌーイ試行列は $0 \leq \bar{R}_{dS} \leq 1$ 、 $\bar{R}_{dL} \geq 1$ および $0 \leq f_r \leq 1$ の制約条件を持つ。結果的に、 $\bar{R}_{dA} = 1$ において標準偏差 σ に対する歪度 S_k の値は $\sigma - (1/\sigma) \leq S_k < \infty$ という上限と下限を持つ(Niibori et al., 1999)。同様なことはベータ分布にも適用でき、ここでのベータ分布 $F_{\text{Beta}}(\bar{R}_d)$ は次式により定義するとき、 $\sigma - (1/\sigma) \leq S_k \leq 2\sigma$ となる。

$$F_{\text{Beta}} = [(\bar{R}_d / \bar{R}_{d\max})^{a-1} \{1 - (\bar{R}_d / \bar{R}_{d\max})\}^{b-1}] / \{\bar{R}_{d\max} B(a, b)\}$$

Fig.6 Average breakthrough curves based on some probability density functions (Peclet number=10). (Dotted lines show two reference curves through the medium with uniform $\bar{R}_d$ taking the arithmetic mean or the geometric mean. The other curves almost agree, when the $\bar{R}_d$ -distribution has the common values in the arithmetic mean and the standard deviation, even if the skewness is different. This tendency does not depend on the kind of probability density functions.)

$$a > 0, b > 0, \quad 0 < \bar{R}_d / \bar{R}_{d\max} < 1 \quad (11)$$

ここで $B(a, b)$ はベータ関数、 $\bar{R}_{d\max}$ は $\bar{R}_d$ の最大値である。

Fig.6およびFig.7は $\bar{R}_{dA} = 1$ および $\sigma = 0.95$ の $\bar{R}_d$ 分布により得られる応答曲線 $\bar{C}$ である。Fig.6はペクレ数 Pe が10、Fig.7は 10^2 の場合である。異方性は無視している。この図から分かるように、 Pe が 10^2 程度までは、応答曲線 $\bar{C}$ に及ぼす歪度の影響は小さい。また、均一な場合($\bar{R}_d = 1$)と比較すると、 $\bar{R}_d$ の分布により見かけ上混合を受けた応答になる。また、もし、この系を代表する遅延係数を幾何平均とすると、その応答は一樣でない分布を持つ場合に比較してピークが高くかつその到達時間が短いものとなる。これらの傾向は、より小さい標準偏差を持つ場合や、ベータ分布を用いても確認することできた。ただし、ベータ分布はFig.5に示すように、対数正規分布と等しい歪度を持つ分布を採りえないため、ベルヌーイ試行列と比較した。Fig.6やFig.7と同様にそれぞれの応答は標準偏差や歪度の影響は小さく重なって表れた。

遅延係数の実測値は一般に数桁程ばらつく。したがって、上に述べた $\sigma = 0.95$ という値はどの程度の分布を意味するかを確認しておく。いま、ベルヌーイ試行列を例に取ると、小さい方の遅延係数を1、大きい方の遅延係数を 10^3 とする。小さい方の遅延係数の分率 f_r を0.5とすると、それらの算術平均値 $\bar{R}_{dA}^*$ は 0.5×10^3 となり、この値で割った $\bar{R}_d$ は各々1/500と2となる。この場合の標準偏差は1よりわずかに小さい。したがって、本研究において定義した標準偏差において0.95という値は遅延係数の相当広いばらつきをも覆う値である。標準偏差をこの値より小さくしても、算術平均値を用いて均質化できる傾向は変わらない。

4. 結 言

本研究では、2次元の系において遅延係数が一樣でない場合の物質の移動について数値計算により検討した。その結果、遅延係数の分布が流れに垂直な方向に存在する場合、その層の傾度が系全体の大きさに比較して小さいと、応答は平均の遅延係数を与えた系と大きく異なり、遅延係数の分布を考慮しなければならない。この傾向は遅延係数の標準偏差が大きい場合や局所の混合拡散係数が小さい場合に、より顕著に表れる。また、遅延係数が層状に限定されることなく、空間にランダムに存在し、その値の頻度がある確率密度関数に従うと見なされる場合、応答は確率密度関数の種類によらず、分布の算術平均値を一樣に系に与えた場合とほぼ一致する。さらに、系の遅延係数を、従来比較的多く用いられる幾何平均により代表させると、その応答は、分布を考慮した場合に比べ早期に高いピークを持つことを示した。

Fig.7 Average breakthrough curves based on some probability density functions (Peclet number= 10^2). (Dotted lines show two reference curves same as Fig.6. The other curves are based on the $\bar{R}_d$ -distribution with the common values in the arithmetic mean and the standard deviation. The tendency as shown in Fig.6 is confirmed for up to Peclet number 10^2).

長半減期核種が生物圏に至るまでに十分な時間を必要とし、また、生物圏に放出しても核種の線量が自然放射線のレベルを超えないことを期待する本システムの設計では、遅延効果の評価が重要である。今回の検討では、遅延係数のみの2次元空間分布を扱ったが、今後、浸透性の分布と併せて検討する必要がある。また、 K_d 値の測定法やそれに基づく遅延係数についても基礎的な検討を継続しつつ、核種移行の評価という目的に対して、データに要求する精度を明確化する根拠を早急に整理しなければならない。本研究はその一つの試みである。

謝辞 本研究の一部は、科学研究費補助金基盤研究 (C) 課題番号 11680509 による。関係各位に記して謝意を表す。

記号

- $B(a, b)$: ベータ関数 (Beta function) (—)
 C : 無次元濃度 (Dimensionless concentration) (—)
 C_{in} : 無次元注入濃度 (Dimensionless injection-concentration) (—)
 $\bar{C}$: 式 (6) により定義された正規化濃度 (Normalized concentration defined by equation (6)) (—)
 $\bar{\bar{C}}$: 式 (7) により定義された平均正規化濃度 (Average normalized concentration defined by equation (7)) (—)
 c : 着目核種の濃度 (Concentration for the nuclide of interest) (kg/m^3)
 c^* : 系に注入される核種濃度 (Nuclide concentration injected into the system) (kg/m^3)
 D_e : 混合拡散係数の代表値 (Characteristic value of mixed diffusion coefficient) (m^2/s)
 D_{ij} : ij 成分の混合拡散係数 (Mixed diffusion coefficient for ij -component) (m^2/s)
 $\bar{D}_{ij}$: ij 成分の無次元混合拡散係数 (Dimensionless mixed-diffusion-coefficient for ij -component) (m^2/s)
 $F(\bar{R}_d)$: $\bar{R}_d$ の確率密度関数 (Probability density function of $\bar{R}_d$) (—)
 $f(R_d)$: R_d の確率密度関数 (Probability density function of R_d) (—)
 f_t : ベルヌーイ試行列において $\bar{R}_{dS}$ をとる分率 (Fraction taking $\bar{R}_{dS}$ in Bernoulli trials) (—)
 K_d : 分配係数 (Distribution coefficient) (kg/m^3)
 n : モンテカルロ法の試行回数 (Trial number in Monte Carlo Method) (—)
 n_X : X 方向の領域分割数 (Cell number in X -direction of the region) (—)
 n_Y : Y 方向の領域分割数 (Cell number in Y -direction of the region) (—)
 Pe : ペクレ数 (Peclet number) (—)
 R_d : 遅延係数 (Retardation coefficient) (—)
 R_d^* : 遅延係数の算術平均値 (Arithmetic mean of R_d) (—)
 $R_{d\min}$: 遅延係数の分布における最小値 (Smallest value in R_d -distribution) (—)
 $\bar{R}_d$: 式 (3) により正規化された遅延係数 (Retardation coefficient normalized by equation (3), $\bar{R}_d = R_d/R_d^*$) (—)
 $\bar{R}_{dA}$: 正規化された遅延係数の算術平均値 (Arithmetic mean of $\bar{R}_d$, $\bar{R}_{dA}$ equals unity) (—)
 $\bar{R}_{d\min}$: 正規化された遅延係数の最小値 (Smallest value in the normalized retardation-coefficient, $\bar{R}_{d\min} = R_{d\min}/R_d^*$) (—)
 S_k : $\bar{R}_d$ 分布の歪度 (Skewness of $\bar{R}_d$ -distribution) (—)
 T : 無次元時間 (Dimensionless time) (—)
 T_{in} : 無次元注入時間 (Dimensionless injection-time) (—)
 t : 時間 (Time) (s)

t^* : 式 (4) により定義された代表時間 (Characteristic time defined equation (4)) (s)

U : X 方向の無次元流速 (Dimensionless flow-velocity in X -direction) (—)

u : x 方向のダルシー流速 (Darcy flow-velocity in x -direction) (m/s)

u^* : 代表流速 (Characteristic flow-velocity) (m/s)

V : Y 方向の無次元流速 (Dimensionless flow-velocity in Y -direction) (—)

v : y 方向のダルシー流速 (Darcy flow velocity in y -direction) (m/s)

X : x 軸上の無次元距離 (Dimensionless distance on x -axis) (—)

x : x 座標 (x -coordinate) (m)

x_1 : 着目領域の x 方向距離 (x -direction distance for the region of interest) (m)

Y : y 軸上の無次元距離 (Dimensionless distance on y -axis) (—)

y : y 座標 (y -coordinate) (m)

ΔT : 無次元離散時間 (Dimensionless discrete-time) (—)

δ : デルタ関数 (Dirac delta function) (—)

ε : 空隙率 (Porosity) (—)

ρ_s : 固相密度 (Solid phase density) (kg/m^3)

σ : $\bar{R}_d$ 分布の標準偏差 (Standard deviation of $\bar{R}_d$ -distribution) (—)

添え字

Ber: ベルヌーイ試行列 (Bernoulli trials)

Beta: ベータ分布 (Beta distribution)

L: 大きい方の (Larger)

S: 小さい方の (Smaller)

引用文献

- 安 俊弘他 (1995): 日本原子力学会誌, Vol. 37, p. 59-77
Chesnut, D.A.(1995): Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, edited by T.Murakami and R.C.Ewing (Mater.Res.Soc. Proc., Vol. 353, Pittsburgh, PA), p. 463-470
Delay, F., Porel, G. and De Marsily, G.(1997): J. Contaminant Hydrology, Vol. 25, p. 63-84
DOE (1998): Viability Assessment of a Repository at Yucca Mountain, DOE/RW-0508, Vol. 1, p. 2-62-2-84
Gylling, B., Moreno, L. and Neretnieks, I. (1995): Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, edited by T.Murakami and R.C.Ewing (Mater. Res. Soc. Proc., Vol. 353, Pittsburgh, PA) p. 395-402
Haga, D., Niibori, Y. and Chida, T.(1999): Water Resources Research, Vol. 35, p. 1065-1077
広城吉成・神野健二・初井和朗・横山拓史・和田信一郎 (1997): 土木学会論文集, No. 579/II-41, p. 15-27
Huyakorn, P.S. and Pinder, G.F.(1983): Computational method in subsurface flow, Academic Press, New York, p. 186-187
JNC (1999): わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次取りまとめ—
Levenspiel, O. (1972): Chemical Reaction Engineering, 2nd Edn., Wiley, New York, p. 275-278
Moreno, L., Tsang, Y.W., Tsang, C.F., Hale, F.V. and Neretnieks, I.(1988): Water Resources Research Vol. 24, p. 2033-2048
Moreno, L., Tsang, C.F., Tsang, Y., and Neretnieks, I. (1990): Water Resources Research, Vol. 26, p. 2377-2391
守屋由介・栢山 修・新堀雄一・田中紘一 (2000): 日本原子力学会秋の大会予稿集, III, p. 707
Mukhopadhyay, S. and Cushman, J.H.(1997): Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX, edited by Gray, W.J. and Triay, I.R.(Mater. Res. Soc. Proc., Vol. 465, Pittsburgh, PA) p. 885-892
Nagano, S., Nakashima, S., Nakayama, S. and Senoo, M.(1994): Clays and Clay Mineral, Vol. 42, p. 226-234
中川 啓・神野健二・細井土佐男・畑中耕一郎・井尻裕二・亘 真吾 (1998): 地下水学会誌, Vol. 40, p. 1-16
新堀雄一・洪承燮・千田 佑 (1994): 地下水学会誌, Vol. 36, p. 123-132
新堀雄一・千田 佑・田中正三 (1985): 日本地熱学会誌, Vol. 7, p. 345-358
Niibori, Y. and Chida, T.(1994): Transport in Porous Media, Vol. 15, p. 1-14
Niibori, Y., Kunita, M., Tochiyama, O. and Chida, T.(2000): J.Nuclear Science and Technology, Vol. 37, p. 349-357
Niibori, Y., Ogura, H. and Chida, T.(1995): Geothermics, Vol. 24, p. 49-60
Niibori, Y., Tochiyama, O. and Chida, T.(1997): Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX, edited by W.J. Gray and I.R. Triay (Mater. Res. Soc. Proc., Vol. 465, Pittsburgh, PA) p. 917-924
Niibori, Y., Tochiyama, O. and Chida, T.(1999): Scientific Basis for Nuclear Waste Manage-

- ment XXII, edited by Wronkiewicz, D.J. and Lee, J.H. (Mater. Res. Soc. Proc., Vol. 556, Pittsburgh, PA), p. 751–758
- Nordqvist, A.W., Tsang, Y.W., Tsang, C.F., Deverstop, B. and Andersson, J.(1992) : Water Resources Research, Vol. 28, p. 1703–1713
- 小出 仁 (1990) : 資源と素材, Vol. 106, p. 495–499
- 大江俊昭 (1995) : 日本原子力学会誌, Vol. 37, p. 1006–1008
- PNC(1992) : 高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成 3 年度—, PNC TN1410 92-0 86, p. 5–3–5–4
- 下田紗音子・新堀雄一・田中紘一・杢山 修 (2001) : 日本原子力学会春の年会講演要旨集, p. 624
- Skagius, K. and Neretnieks, I.(1988) : Water Resources Research, Vol. 24, p. 75–84
- Smith, L. and Schwartz, F.W.(1980) : Water Resources Research, Vol. 16, p. 303–313
- 杢山 修・高須亜紀・池田孝夫・木村英雄・佐藤正知・長崎晋也・中山真一・新堀雄一・古屋廣高・三頭聡明・山口徹治 (1998) : 原子力バックエンド研究, Vol. 5, p. 3–19
- Tsang, C.F., Tsang, Y.W. and Hale, F. (1991) : Water Resources Research, Vol. 27, p. 3095–3106
- Tsang, Y.W., Tsang, C.F., Neretnieks, I. and Moreno, L.(1988) : Water Resources Research, Vol. 24, p. 2049–2060
- 上田真三 (1999) : 京都大学原子炉実験所天然バリア K_d 専門研究会報告書, 編集 福井正美・木村英雄, KURRI-KR-44, p. 109–118
- Wen, X.H. and Gomez-Hernandez, J.J.(1998) : J. Contaminant Hydrology, Vol. 30, p. 129–156
- 楊延国・新堀雄一・千田 信 (1998) : 石油技術協会誌, Vol. 63, p. 229–238