

JAERI - M
86-102

放射性核種の地中移動予測因子算出コードの開発

1986年7月

小川 弘道・大貫 敏彦

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 磯高野高速印刷

放射性核種の地中移動予測因子算出コードの開発

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

小川 弘道・大貫 敏彦

(1986年6月25日受理)

放射性核種の土壤中濃度分布または流出濃度分布より、放射性核種の土壤中移動を予測するための因子（遅延係数，水流速，拡散係数等）を算出するコード（MIGSTEM-FIT）を開発した。本コードでは，放射性核種の移動支配方程式の解と測定により得られた濃度分布とをFlexible tolerance法により比較し，最適の予測因子値を決定する。求解法の1つである差分法の正当法は解析解との比較により確認し，既知の予測因子を有する濃度分布に対するフィッティングによりフィッティングの正当性を確認した。また，誤差の影響を検討したところ，算出される予測因子の誤差は濃度分布の誤差よりも小さくなることが明らかとなった。

Development of Computer Code for Determining
Prediction Parameters of Radionuclide Migration in Soil Layer

Hiromichi OGAWA and Toshihiko OHNUKI
Department of Environmental Safety Research,
Tokai Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura Naka-gun, Ibaraki-ken
(Received June 25, 1986)

A computer code (MIGSTEM-FIT) has been developed to determine the prediction parameters, retardation factor, water flow velocity, dispersion coefficient, etc., of radionuclide migration in soil layer from the concentration distribution of radionuclide in soil layer or in effluent. In this code, the solution of the predicting equation for radionuclide migration is compared with the concentration distribution measured, and the most adequate values of parameter can be determined by the flexible tolerance method. The validity of finite differential method, which was one of the method to solve the predicting equation, was confirmed by comparison with the analytical solution, and also the validity of fitting method was confirmed by the fitting of the concentration distribution calculated from known parameters. From the examination about the error, it was found that the error of the parameter obtained by using this code was smaller than that of the concentration distribution measured.

Keywords: MIGSTEM-FIT Code, Prediction Parameter, Radionuclide Migration, Flexible Tolerance Method, Retardation Factor, Water Flow Velocity, Dispersion Coefficient, STEM.

目 次

1. 緒 言	1
2. 放射性核種の移動予測および予測因子決定法	1
2.1 放射性核種の移動予測方程式	1
2.1.1 移動支配方程式	1
2.1.2 解法	2
2.2 予測因子決定法	4
2.2.1 目的関数	5
2.2.2 収束判定	5
3. 予測因子算出コード	6
4. 結果および考察	7
4.1 差分法の正当性	7
4.2 予測因子決定法の正当性	7
4.3 測定誤差の影響	7
5. 結 言	8
謝 辞	8
参考文献	9

Contents

1. Introduction	1
2. Prediction of radionuclide migration and method determining prediction parameters	1
2.1 Prediction of radionuclide migration	1
2.1.1 Predicting equation of radionuclide migration	2
2.1.2 Solution	4
2.2 Method determining prediction parameters	5
2.2.1 Objective function	5
2.2.2 Judgement of convergence	6
3. Code determining prediction parameters	7
4. Results and discussions	7
4.1 Validity of finite differential solution	7
4.2 Validity of method determining prediction parameters	7
4.3 Influence of measurement error	7
5. Conclusions	8
Acknowledgement	8
References	9

1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物の陸地処分において、放射性核種が廃棄物から人間環境へ至るまでには、放射性核種の移動を阻止する様々なバリアを設けることとなっている¹⁾。その中でも、土壌は長期にわたってバリアとして働き、放射性核種の地中移動に関する多くの研究が行なわれている²⁻⁵⁾。

日本原子力研究所においては、原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物に含まれる主要放射性核種 (^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs 等) を対象として、施設内における放射性核種の地中移動試験、すなわち環境シミュレーション試験を実施している^{6, 7)}。環境シミュレーション試験の目的には、放射性核種の移動に対して土壌の有するバリア効果を実測することとともに、土壌中における放射性核種の移動性を定量化することが含まれている。そのため、環境シミュレーション試験では、自然状態のまま採取した通気層および帯水層に対する放射性核種移動試験を行ない、それぞれの土壌層に対して放射性核種土壌中濃度分布および放射性核種流出液中濃度等を測定している。

放射性核種の土壌中における移動を予測するためには、ダルシーの法則に基づいた水流支配方程式⁸⁾、多孔質中における溶質の移動を表わす拡散輸送方程式²⁾、液相および固相間での放射性核種の吸着反応を表わす反応式を連立させて解く必要がある。放射性核種の土壌層中移動に関する因子は、水流速、遅延係数、分配係数、拡散(分散)係数等であり、種々の方法により測定される。しかしながら、環境シミュレーション試験のごとく自然状態のまま採取した土壌を試料として用いる場合には、試料の不均一性を含んだ平均的な因子の値を求める必要がある。そのため、試験結果から直接因子を推定する方法が考えられ、試験により得られた放射性核種土壌中濃度分布および放射性核種流出液中濃度に、放射性核種の地中移動支配方程式をフィッティングして因子を求める方法が用いられている⁹⁾。

本報告は、放射性核種の移動試験の結果(放射性核種土壌中濃度分布および放射性核種流出液中濃度)から土壌固有の移動予測因子(水流速、遅延係数、分配係数、拡散(分散)係数等)を求めるために開発したコード(MIGSTEM-FIT)の内容と試算結果についてまとめたものである。なお、MIGSTEM-FITは、環境シミュレーション試験のデータを解析するために開発した一連のコード、すなわち3次元円柱座標系通気層中放射性核種移動予測コード(MIGSTEM-2D)¹⁰⁾および3次元直交座標系帯水層中放射性核種移動予測コード(MIGSTEM-AQ)¹¹⁾に引続いて開発したものである。

2. 放射性核種の移動予測方程式および予測因子決定法

2.1 放射性核種の移動予測方程式

2.1.1 移動支配方程式

土壌中における放射性核種の移動は、次の輸送拡散方程式により表わされる。

$$\partial\{C + (1-f)\rho Q/\theta\}/\partial t = \nabla D \nabla C - \nabla V C - \lambda\{C + (1-f)\rho Q/\theta\} + C_q \quad (1)$$

1. 緒 言

低レベル放射性廃棄物の陸地処分において、放射性核種が廃棄物から人間環境へ至るまでには、放射性核種の移動を阻止する様々なバリアを設けることとなっている¹⁾。その中でも、土壌は長期にわたってバリアとして働き、放射性核種の地中移動に関する多くの研究が行なわれている²⁻⁵⁾。

日本原子力研究所においては、原子力発電所等から発生する低レベル放射性廃棄物に含まれる主要放射性核種 (^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs 等) を対象として、施設内における放射性核種の地中移動試験、すなわち環境シミュレーション試験を実施している^{6,7)}。環境シミュレーション試験の目的には、放射性核種の移動に対して土壌の有するバリア効果を実測することとともに、土壌中における放射性核種の移動性を定量化することが含まれている。そのため、環境シミュレーション試験では、自然状態のまま採取した通気層および帯水層に対する放射性核種移動試験を行ない、それぞれの土壌層に対して放射性核種土壌中濃度分布および放射性核種流出液中濃度等を測定している。

放射性核種の土壌中における移動を予測するためには、ダルシーの法則に基づいた水流支配方程式⁸⁾、多孔質中における溶質の移動を表わす拡散輸送方程式²⁾、液相および固相間での放射性核種の吸着反応を表わす反応式を連立させて解く必要がある。放射性核種の土壌層中移動に関する因子は、水流速、遅延係数、分配係数、拡散(分散)係数等であり、種々の方法により測定される。しかしながら、環境シミュレーション試験のごとく自然状態のまま採取した土壌を試料として用いる場合には、試料の不均一性を含んだ平均的な因子の値を求める必要がある。そのため、試験結果から直接因子を推定する方法が考えられ、試験により得られた放射性核種土壌中濃度分布および放射性核種流出液中濃度に、放射性核種の地中移動支配方程式をフィッティングして因子を求める方法が用いられている⁹⁾。

本報告は、放射性核種の移動試験の結果(放射性核種土壌中濃度分布および放射性核種流出液中濃度)から土壌固有の移動予測因子(水流速、遅延係数、分配係数、拡散(分散)係数等)を求めるために開発したコード(MIGSTEM-FIT)の内容と試算結果についてまとめたものである。なお、MIGSTEM-FITは、環境シミュレーション試験のデータを解析するために開発した一連のコード、すなわち3次元円柱座標系通気層中放射性核種移動予測コード(MIGSTEM-2D)¹⁰⁾および3次元直交座標系帯水層中放射性核種移動予測コード(MIGSTEM-AQ)¹¹⁾に引続いて開発したものである。

2. 放射性核種の移動予測方程式および予測因子決定法

2.1 放射性核種の移動予測方程式

2.1.1 移動支配方程式

土壌中における放射性核種の移動は、次の輸送拡散方程式により表わされる。

$$\partial\{C + (1-f)\rho Q/\theta\}/\partial t = \nabla D \nabla C - \nabla V C - \lambda\{C + (1-f)\rho Q/\theta\} + C_q \quad (1)$$

ここで、 C は間隙水中放射性核種濃度 (C_i / cm^3)、 Q は土壌中放射性核種濃度 (C_i / g)、 f は空隙率、 ρ は土壌の密度 (g / cm^3)、 θ は水分率、 D は拡散 (分散) 係数 (cm^2 / min)、 V は水流速 (cm / min)、 λ は崩壊定数 ($1 / \text{min}$)、 C は放射性核種の生成量 ($C_i / \text{cm}^3 \cdot \text{min}$) である。(1)式から明らかなように、間隙水中と土壌中における放射性核種の反応、すなわち C と Q との関係が既知ならば、各因子の値を代入することにより放射性核種の移動が予測できる。

C と Q との間の反応式としてヘンリー型吸着反応式 ($Q = K_d C$, K_d : 分配係数)を採用すると、土壌中における放射性核種の1次元移動は次式で表わされる。

$$\partial C / \partial t = (D \partial^2 C / \partial z^2 - V \partial C / \partial z - \lambda K_f C + C_q) / K_f \quad (2)$$

ここで、 K_f は遅延係数と呼ばれ、分配係数 K_d とは $K_f = 1 + (1 - f) \rho K_d / \theta$ の関係にある。

放射性核種の土壌中移動に関して、イオン状放射性核種の移動の他に粒子状放射性核種の移動が考えられ、相互に影響を及ぼさない場合、それぞれの移動形態に対して(2)式が独立に成立することが提案されている^{12,13,14)}。

$$\partial C_i / \partial t = (D_i \partial^2 C_i / \partial z^2 - V_i \partial C_i / \partial z - \lambda K_{f_i} C_i + C_{q_i}) / K_{f_i} \quad (3)$$

$$\partial C_p / \partial t = (D_p \partial^2 C_p / \partial z^2 - V_p \partial C_p / \partial z - \lambda K_{f_p} C_p + C_{q_p}) / K_{f_p} \quad (4)$$

ここで、添字 i および添字 p はそれぞれイオン状および粒子状の放射性核種を示し、全体としての放射性核種の移動は、(3)式と(4)式の合計として次式で表わされる。

$$\begin{aligned} \partial C / \partial t = & (D_i \partial^2 C_i / \partial z^2 - V_i \partial C_i / \partial z - \lambda K_{f_i} C_i + C_{q_i}) / K_{f_i} \\ & + (D_p \partial^2 C_p / \partial z^2 - V_p \partial C_p / \partial z - \lambda K_{f_p} C_p + C_{q_p}) / K_{f_p} \end{aligned} \quad (5)$$

したがって、各因子を与えて、適当な初期条件および境界条件のもとで(5)式を解くことにより放射性核種の土壌中における移動が予測できる。

2.1.2 解法

1) 差分法

偏微分方程式を解く場合、最も一般的に使われる解法は差分法であり、種々の境界条件および初期条件のもとで解くことができる。

移動予測式(5)を解く場合の基本式は(2)式であり、変形すると次式となる。

$$K_f \partial C / \partial t = D \partial^2 C / \partial z^2 - V \partial C / \partial z - \lambda K_f C + C_q \quad (6)$$

右辺を空間差分 (中心差分) するために、時間に関して $t_j = t_{j-1} + \Delta t$ 、空間に関して $z_i = z_{i-1} + \Delta z$ とすると、第1項および第2項は次のようになる。

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = (D / \Delta z^2) (C_{j-1, i+1} - 2C_{j-1, i} + C_{j-1, i-1}) \quad (7)$$

$$V \frac{\partial C}{\partial z} = (V / 2 \Delta z) (C_{j-1, i+1} - C_{j-1, i-1}) \quad (8)$$

次に、(7)および(8)式を(6)式に代入して整理すると、(9)式が得られる。

$$Kf \frac{\partial C}{\partial t} = (D / \Delta z^2 - V / 2 \Delta z) C_{j-1, i+1} + (-2D / \Delta z^2 - \lambda Kf) C_{j-1, i} + (D / \Delta z^2 + V / 2 \Delta z) C_{j-1, i-1} + Cq \quad (9)$$

ここで、 $\alpha = D / \Delta z^2 - V / 2 \Delta z$ 、 $\beta = -2D / \Delta z^2 - \lambda Kf$ 、 $\gamma = D / \Delta z^2 + V / 2 \Delta z$ とすれば、(9)式は(10)式のように簡単になる。

$$Kf \frac{\partial C}{\partial t} = \alpha C_{j-1, i+1} + \beta C_{j-1, i} + \gamma C_{j-1, i-1} + Cq \quad (10)$$

次に(10)式を時間差分化すると、次式となる。

$$Kf (C_{j, i} - C_{j-1, i}) / \Delta t = a (\alpha C_{j, i+1} + \beta C_{j, i} + \gamma C_{j, i-1} + Cq_{j, i}) + (1-a) (\alpha C_{j-1, i+1} + \beta C_{j-1, i} + \gamma C_{j-1, i-1} + Cq_{j-1, i}) \quad (11)$$

ただし、 $a = 0$ の時は完全陽差分、 $a = 1/2$ の時は Crank-Nicolson 法、 $a = 1$ の時は完全陰差分を表わす。(11)式を整理すると、 $\alpha' = a \alpha \Delta t / Kf$ 、 $\beta' = a \beta \Delta t / Kf - 1$ 、 $\gamma' = a \gamma \Delta t / Kf$ 、 $\delta_{j, i} = -Cq_{j-1, i} - (1-a) \Delta t (\alpha C_{j-1, i+1} + \beta C_{j-1, i} + \gamma C_{j-1, i-1} + Cq_{j-1, i}) / Kf$ として、次式となる。

$$\alpha' C_{j, i+1} + \beta' C_{j, i} + \gamma' C_{j, i-1} = \delta_{j, i} \quad (12)$$

差分化された(12)式の連立方程式は3重対角行列式の解法である Recurrence formular を用いて解くことができる。(12)式において、簡単にするために空間に依存する成分のみを考慮すると次式となる。

$$\alpha' C_{i+1} + \beta' C_i + \gamma' C_{i-1} = \delta_i \quad (13)$$

この式に関して Recurrence の型を満たす E_i および F_i を求める。Recurrence の型、すなわち $C_i = E_i C_{i+1} + F_i$ より $C_{i-1} = E_{i-1} C_i + F_{i-1}$ であり、(13)式に代入して整理すると(14)式を得る。

$$C_i = -\alpha' C_{i+1} / (\beta' + \gamma' E_{i-1}) + (\delta_i - \gamma' F_{i-1}) / (\beta' + \gamma' E_{i-1}) \quad (14)$$

以上から次式により(2)式を解くことができる。

$$C_i = E_i C_{i+1} + F_i \quad (15)$$

ただし、 $E_i = -\alpha' / (\beta' + \gamma' E_{i-1})$ 、 $F_i = (\delta_i - \gamma' F_{i-1}) / (\beta' + \gamma' E_{i-1})$ である。

したがって、(15)式をイオン状および粒子状の放射性核種の移動に適用すれば、(5)式の解を求めることができ、固相中濃度はヘンリー型反応式により容易に求めることができる。

なお、初期条件は、放射性核種が流入する前には放射性核種は存在しないとして、すべての i に関して $C_0, i = 0$ とした。また、境界条件は入口境界条件および出口境界条件が存在するが、出口境界条件は計算を容易にするため、すべての j に関して $C_{j, I} = 0$ (I は空間 mesh 分割数) とし、入口境界条件として任意の関数形を入力可能とした。

2) 解析解

偏微分方程式を解く場合、最も正確な値を与えるのは解析的な解である。(5)式の一般的な解は存在しないが、基本的なケースに関しては(2)式を解析的に解くことが可能であり、(5)式の解も解析的に与えられる。

放射性核種の崩壊および生成を無視 ($\lambda = 0$, $C_q = 0$) し、放射性核種が流入する以前には放射性核種が存在せず、ある時間から一定濃度の放射性溶液が土壌内に流入する場合、(2)式の解は次式で与えられる(ただし、各因子は場所に依らず一定である)。

$$C = C_0 \left[\exp(Vz/D) \operatorname{erfc} \left\{ (z + Vt/Kf) / \sqrt{4Dt/Kf} \right\} + \operatorname{erfc} \left\{ (z - Vt/Kf) / \sqrt{4Dt/Kf} \right\} \right] / 2 \quad (16)$$

ここで、 C_0 は流入濃度である。

したがって、(16)式をイオン状および粒子状の放射性核種に適用して、(5)式の解は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} C = & C_{0i} \left[\exp(V_i z/D_i) \operatorname{erfc} \left\{ (z + V_i t/Kf_i) / \sqrt{4D_i t/Kf_i} \right\} \right. \\ & \left. + \operatorname{erfc} \left\{ (z - V_i t/Kf_i) / \sqrt{4D_i t/Kf_i} \right\} \right] / 2 \\ & + C_{0p} \left[\exp(V_p z/D_p) \operatorname{erfc} \left\{ (z + V_p t/Kf_p) / \sqrt{4D_p t/Kf_p} \right\} \right. \\ & \left. + \operatorname{erfc} \left\{ (z - V_p t/Kf_p) / \sqrt{4D_p t/Kf_p} \right\} \right] / 2 \end{aligned} \quad (17)$$

また、固相中濃度はヘンリー型反応式により $Q = KdC$ として計算できる。

2.2 予測因子決定法

Flexible tolerance 法とは、線形または非線形の等号および不等号の制約条件式を扱って、最適値を探索する手法である。Flexible tolerance 法では、最終的に得られる解が制約条件を満たす保障さえあれば、途中段階で現れる解は必ずしも制約条件を満たしていなくても良いという考え方

に基づいている。そのため、実際の許容領域より広い疑似的な許容領域を設定し、探索が進むに従ってこの領域を真の許容領域に近づけていく。このため、計算の途中において解として受入れられる点の存在し得る範囲が広められ、捨て去られる点が少なくなるので計算時間の短縮が期待できるものである¹⁵⁾。

2.2.1 目的関数

Flexible tolerance 法により測定データにフィッティングする場合、目的関数 F が必要であり、以下に目的関数を示す。

流出濃度をフィッティングする場合には、目的関数として次式を用いた。

$$F = \sum_{t=t_1}^{t_2} [\{ \text{CINTPB}(t) - \text{BCOUT}(t) \} / \{ \text{CINTPB}(t) + \text{BCOUT}(t) \}]^2 \quad (18)$$

ここで、 $t_1 \sim t_2$ は流出濃度に対するフィッティングの範囲（時間）であり、 $\text{CINTPB}(t)$ は時刻 t に対して差分解析または解析解から予測される流出濃度、 $\text{BCOUT}(t)$ は同時刻に測定した流出濃度である。

土壌中濃度分布をフィッティングする場合には、目的関数として次式を用いた。

$$F = \sum_{z=z_1}^{z_2} [\{ \text{CINTPE}(z) - \text{SOLEX}(z) \} / \{ \text{CINTPE}(z) + \text{SOLEX}(z) \}]^2 \quad (19)$$

ここで、 $z_1 \sim z_2$ は土壌中濃度分布に対するフィッティングの範囲（位置）であり、 $\text{CINTPE}(z)$ は位置 z に対して差分解析または解析解から予測される土壌中濃度、 $\text{SOLEX}(z)$ は同位置で測定した土壌中濃度である。

2.2.2 収束判定

Flexible tolerance 法では先に述べた目的関数 F を小さくする方向に因子を変化させる。例えば、フィッティング因子が拡散（分散）係数と遅延係数である場合、拡散係数および遅延係数として3種類の異なる値、すなわち D_1, D_2, D_3 および K_1, K_2, K_3 をそれぞれ与えて、それぞれの目的関数 $F(x_1), F(x_2), F(x_3)$ を計算する。次に、この3組の目的関数から、より小さな目的関数を与える拡散係数と遅延係数の組 $X_4 = (D_4, K_4)$ を予測する。3組の因子をベクトル $X_1 = (D_1, K_1), X_2 = (D_2, K_2), X_3 = (D_3, K_3)$ で表示する。ここで、 $F(x_2)$ が $F(x_1), F(x_3)$ よりも大きいとすると、 X_2 が X_4 と置き換わり3組の目的関数は $F(x_1), F(x_4), F(x_3)$ となる。この操作を繰返して目的関数を小さくし、各因子の変化が設定した収束判定値よりも小さくなった場合、収束したとして計算を打ち切る。

3. 予測因子算出コード

差分法および解析解による放射性核種濃度の計算を含めた Flexible tolerance 法によるフィッティングコード全体のフローチャートを Fig. 1 に示す。

入力データを読み込んだ後、差分法および解析解の計算のために時間・空間の計算点とその幅が設定される。空間幅 Δz は一定であり、 z_{sta} を計算開始位置として、 $z_i = z_{sta} + i\Delta z$ ($i = 0 \sim I$) により空間計算点が設定される。時間計算点も同様に、 t_{sta} を計算開始時間として $t_j = t_{sta} + j\Delta t$ ($j = 0 \sim J$, J : 時間 mesh 分割数) により設定されるが、時間幅 Δt は出口濃度の時間変化が一定値以下になるように自動的に設定される。すなわち、 ϵ ($= 1 \times 10^{-8}$) を出口濃度の変化として設定し、以下の条件を満足するように時間幅を決定する。

$$(C_{old} - C_{new}) / (C_{old} + C_{new}) \leq \epsilon \quad (20)$$

入力データおよび計算点等を確認して入力データを出力した後、放射性核種濃度の計算とともに、Flexible tolerance 法による最適因子の計算を行ない、最適因子とともに計算された濃度等を出力する。

流出液中濃度および土壌中濃度に対して行なう Flexible tolerance 法を用いた測定データへのフィッティングのフローチャートを Fig. 2 に示す。フィッティングの対象となる濃度分布および因子の個数ごとに5種類の計算モデルが準備され、それらを Table 1 に示す。フィッティング因子は各モデルとも遅延係数、拡散係数、水流速等であるが、因子を固定してフィッティングすることも可能である。また、(5)式の解法、境界条件等は任意に与えることが可能である。差分法による濃度計算のフローチャートを Fig. 3 に示す。

ここで、実験により得られる濃度分布では、測定間隔が一定とならない場合がある。そのため、計算された濃度を測定データと比較する場合には、ラグランジュ補間により差分法および解析解を試験データと同じサンプリング位置あるいは時刻に補間して比較する。ラグランジュ補間は1次補間および2次補間を選択可能であり、 $f_0(x_0)$, $f_1(x_1)$, $f_2(x_2)$ のデータ点より $F(x)$ の値を補間する場合の1次補間式および2次補間式は以下の通りである。

$$\text{1次補間式} \quad F = \{ (x - x_1) / (x_0 - x_1) \} f_0 + \{ (x - x_0) / (x_1 - x_0) \} f_1 \quad (21)$$

$$\begin{aligned} \text{2次補間式} \quad F = & \left[\{ (x - x_1) (x - x_2) \} / \{ (x_0 - x_1) (x_0 - x_2) \} \right] f_0 \\ & + \left[\{ (x - x_0) (x - x_2) \} / \{ (x_1 - x_0) (x_1 - x_2) \} \right] f_1 \\ & + \left[\{ (x - x_0) (x - x_1) \} / \{ (x_2 - x_0) (x_2 - x_1) \} \right] f_2 \end{aligned} \quad (22)$$

4. 結果および考察

4.1 差分解の正当性

差分法により計算される解の正当性を確認するために、差分解と解析解とを比較した。放射性核種の崩壊および生成を無視して長さ117 cmの土壤層内に一定濃度の放射性水溶液が連続流入する場合を設定し、遅延係数 $K_f = 1000$ 、拡散係数 $D = 100$ (cm^2/min)、水流速 $V = 0.5$ (cm/min)で6920 sec後に観察される土壤中濃度分布を解析解および差分法により計算して表面濃度で規格化すると、Table 2のごとく、解析解と差分解は2桁目まで完全に一致し、3桁目もほとんど一致した。したがって、差分解により放射性核種の土壤中濃度が計算できることが確認された。

4.2 予測因子決定法の正当性

本コードにより得られる因子の値の確証を得るため、フィッティング法の正当性について検討した。

因子が既知である土壤中濃度分布に対してフィッティングを行ない、本コードにより得られた因子と最初に設定した因子を比較した。フィッティングした土壤中濃度分布は、4.1項と同じ分布 ($K_f = 1000$, $D = 100$ (cm^2/min), $V = 0.5$ (cm/min)で、6920 sec後)であり、解析解により1.17 cmごとの土壤中濃度を計算して作成した。

崩壊および発生がない場合、濃度分布は D/K_f および V/K_f で決まるので、 V を0.5に固定し、フィッティング範囲を $K_f = 700 \sim 2000$, $D = 50 \sim 150$ とし、初期値を $K_f = 1300$, $D = 70$ からフィッティングを開始した。フィッティングの開始時点では Fig. 4のように、因子を求めるべき分布と異なっていたが、最終的には Fig. 5のように一致し、その結果、 $K_f = 981$, $D = 97.9$ と計算された。これらの値はフィッティングから計算されるべき値である $K_f = 1000$, $D = 100$ と約2%の差であり、収束判定値をより小さくすれば、さらに精度が向上するものと考えられる。なお、 V を固定せず、 V の範囲を0.3~1としてフィッティングしても V を固定した場合と同様にフィッティングが行なわれるが、 $K_f = 1216$, $D = 121$, $V = 0.622$ と計算される。これらの値は設定した値である $K_f = 1000$, $D = 100$, $V = 0.5$ と約20%ずつ異なるが、 D/K_f および V/K_f で比較すると、ほぼ一致している。以上より、本コードにおけるフィッティング法の正当性が確認された。

4.3 測定誤差の影響

実際に測定した土壤中濃度分布または流出液中濃度から本コードにより因子を求める場合、測定データの有する測定誤差が、得られる因子に影響するものと考えられる。したがって、誤差を有する濃度分布を与えてフィッティングすることにより、測定誤差の影響を検討した。

長さ120 cmの土壤層を設定し、 $K_f = 200$, $D = 0.5$ (cm^2/min), $V = 0.2$ (cm/min)の場合の10000 min後における土壤中濃度を解析解により2.4 cmごとに計算した。各位置の

濃度に対して一定の標準偏差 (σ) を有するガウス乱数を用いて誤差を与え、水流速を 0.2 に固定したフィッティングにより因子を求めた。得られた因子 (Kf および D) は、データに与えられた誤差を反映して真値とは異なり、因子の有する誤差を評価するために、標準偏差 5%, 10%, 15% のガウス乱数に対して、それぞれ 100 回ずつ濃度を計算して因子を求めた。得られた各因子の平均および標準偏差を Table 3 に示す。

Table 2 に見られるごとく、得られた因子の値は設定した値とほぼ一致するが、その標準偏差はガウス乱数の標準偏差とともに増加する。しかし、得られた因子の標準偏差はガウス乱数の標準偏差に比べてはるかに小さい。これはデータが複数個であるため、フィッティングにより濃度分布曲線の平滑化を行なっているのと同じこととなり、各データの持つ誤差が緩和されることによるものである。したがって、実際に測定した濃度分布から因子を求める場合には、各々の測定値の持つ誤差を縮小するように因子が計算されることになり、本コードは十分実用に供し得るものと判断された。

5. 結 言

放射性核種の土壤中濃度分布または流出液中濃度分布より、放射性核種の土壤中移動を予測するための因子 (遅延係数, 水流速, 拡散係数等) を算出するコードを開発した。本コードでは、放射性核種の移動支配方程式の解と測定により得られた濃度分布とを Flexible tolerance 法により比較して、最適の予測因子値を決定する。

本コードにおける地中移動支配方程式の主要な解法は差分法であるため、解析解との比較によりその正当性を確認した。また、既知の移動予測因子を有する濃度分布に対して本コードにより因子を決定した場合、因子が精度良く求められた。このことから、本コードにおけるフィッティング法の正当性が確認された。さらに、実験により得られる濃度分布の有する誤差の影響を検討したところ、本コードにより得られた因子の誤差は、濃度分布のそれよりも小さくなることが確認された。

以上より、環境シミュレーション試験において得られる濃度分布から、放射性核種の土壤層中移動に関する因子を求めることが可能となった。

謝 辞

本報告をまとめるに際して多くの助言を頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室和達嘉樹室長ならびに山本忠利副主任研究員に感謝の意を表します。また、計算を実行するに際して協力して頂いた日本ソフトウェア開発 (株) 前村克己氏に感謝致します。

濃度に対して一定の標準偏差 (σ) を有するガウス乱数を用いて誤差を与え、水流速を 0.2 に固定したフィッティングにより因子を求めた。得られた因子 (Kf および D) は、データに与えられた誤差を反映して真値とは異なり、因子の有する誤差を評価するために、標準偏差 5%, 10%, 15% のガウス乱数に対して、それぞれ 100 回ずつ濃度を計算して因子を求めた。得られた各因子の平均および標準偏差を Table 3 に示す。

Table 2 に見られるごとく、得られた因子の値は設定した値とほぼ一致するが、その標準偏差はガウス乱数の標準偏差とともに増加する。しかし、得られた因子の標準偏差はガウス乱数の標準偏差に比べてはるかに小さい。これはデータが複数個であるため、フィッティングにより濃度分布曲線の平滑化を行なっているのと同じこととなり、各データの持つ誤差が緩和されることによるものである。したがって、実際に測定した濃度分布から因子を求める場合には、各々の測定値の持つ誤差を縮小するように因子が計算されることになり、本コードは十分実用に供し得るものと判断された。

5. 結 言

放射性核種の土壤中濃度分布または流出液中濃度分布より、放射性核種の土壤中移動を予測するための因子 (遅延係数, 水流速, 拡散係数等) を算出するコードを開発した。本コードでは、放射性核種の移動支配方程式の解と測定により得られた濃度分布とを Flexible tolerance 法により比較して、最適の予測因子値を決定する。

本コードにおける地中移動支配方程式の主要な解法は差分法であるため、解析解との比較によりその正当性を確認した。また、既知の移動予測因子を有する濃度分布に対して本コードにより因子を決定した場合、因子が精度良く求められた。このことから、本コードにおけるフィッティング法の正当性が確認された。さらに、実験により得られる濃度分布の有する誤差の影響を検討したところ、本コードにより得られた因子の誤差は、濃度分布のそれよりも小さくなることが確認された。

以上より、環境シミュレーション試験において得られる濃度分布から、放射性核種の土壤層中移動に関する因子を求めることが可能となった。

謝 辞

本報告をまとめるに際して多くの助言を頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室和達嘉樹室長ならびに山本忠利副主任研究員に感謝の意を表します。また、計算を実行するに際して協力して頂いた日本ソフトウェア開発 (株) 前村克己氏に感謝致します。

濃度に対して一定の標準偏差 (σ) を有するガウス乱数を用いて誤差を与え、水流速を 0.2 に固定したフィッティングにより因子を求めた。得られた因子 (Kf および D) は、データに与えられた誤差を反映して真値とは異なり、因子の有する誤差を評価するために、標準偏差 5%, 10%, 15% のガウス乱数に対して、それぞれ 100 回ずつ濃度を計算して因子を求めた。得られた各因子の平均および標準偏差を Table 3 に示す。

Table 2 に見られるごとく、得られた因子の値は設定した値とほぼ一致するが、その標準偏差はガウス乱数の標準偏差とともに増加する。しかし、得られた因子の標準偏差はガウス乱数の標準偏差に比べてはるかに小さい。これはデータが複数個であるため、フィッティングにより濃度分布曲線の平滑化を行なっているのと同じこととなり、各データの持つ誤差が緩和されることによるものである。したがって、実際に測定した濃度分布から因子を求める場合には、各々の測定値の持つ誤差を縮小するように因子が計算されることになり、本コードは十分実用に供し得るものと判断された。

5. 結 言

放射性核種の土壤中濃度分布または流出液中濃度分布より、放射性核種の土壤中移動を予測するための因子 (遅延係数, 水流速, 拡散係数等) を算出するコードを開発した。本コードでは、放射性核種の移動支配方程式の解と測定により得られた濃度分布とを Flexible tolerance 法により比較して、最適の予測因子値を決定する。

本コードにおける地中移動支配方程式の主要な解法は差分法であるため、解析解との比較によりその正当性を確認した。また、既知の移動予測因子を有する濃度分布に対して本コードにより因子を決定した場合、因子が精度良く求められた。このことから、本コードにおけるフィッティング法の正当性が確認された。さらに、実験により得られる濃度分布の有する誤差の影響を検討したところ、本コードにより得られた因子の誤差は、濃度分布のそれよりも小さくなることが確認された。

以上より、環境シミュレーション試験において得られる濃度分布から、放射性核種の土壤層中移動に関する因子を求めることが可能となった。

謝 辞

本報告をまとめるに際して多くの助言を頂いた環境安全研究部低レベル廃棄物処理処分研究室和達嘉樹室長ならびに山本忠利副主任研究員に感謝の意を表します。また、計算を実行するに際して協力して頂いた日本ソフトウェア開発 (株) 前村克己氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 原子力委員会；原子力開発利用長期計画，（1982）。
- 2) Y. Inoue and W. J. Kaufman ; Health Phys. , 9, 705 (1963).
- 3) H. M. Selim, J. M. Davidson and P. S. Rao ; Soil Sci. Soc. Am. J. , 3, 41 (1977).
- 4) J. K. Means, D. A. Crerar and J. O. Duguid ; Science, 200, 147 (1978).
- 5) G. G. Eichholz, B. G. Wahlig, G. F. Powell and T. F. Craft ; Radioactive Waste Manag. , 58, 511 (1982).
- 6) 和達嘉樹, 山本忠利, 武部慎一, 大貫敏彦, 鷺尾方一, 原田芳金, 斎藤和明；日本原子力学会誌, 24, 182 (1982).
- 7) 山本忠利, 原田芳金, 斎藤和明, 和達嘉樹；JAERI-M 82-143 (1982).
- 8) A. Klute ; Soil Sci. , 73, 105 (1952).
- 9) H. Bachhuber , K. Bunzl and W. Shimmack ; Nuclear Tech. , 59, 291 (1982).
- 10) 大貫敏彦；JAERI-M 84-136 (1984).
- 11) 大貫敏彦, 前村克己；JAERI-M 85-130 (1985).
- 12) 大貫敏彦, 和達嘉樹；日本原子力学会誌, 25, 476 (1983).
- 13) 大貫敏彦, 和達嘉樹；日本原子力学会誌, 26, 880 (1984).
- 14) T. Ohnuki ; Nuclear and Chem. Waste Manag. , in press.
- 15) 堀上邦彦, 鈴木忠和, 藤村統一郎, 中原康明；JAERI-M 9154 (1980).

Table 1 Types of fitting and parameters in MIGSTEM-FIT.

	流出濃度のフィッティング	土壌中濃度分布のフィッティング
0	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 1種類 ・フィッティング因子 遅延係数K（深さ方向に可変）、 水流速V、拡散係数D 	なし
1	なし	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 1種類 ・フィッティング因子 遅延係数（深さ方向に可変）、 水流速、拡散係数、入り口濃度
2	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 1種類 （流出粒子のみ） ・フィッティング因子 遅延係数（深さ方向に可変）、 水流速、拡散係数 	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 1種類 ・フィッティング因子 遅延係数（深さ方向に可変）、 拡散係数、入口濃度 （水流速は流出濃度から）
3	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 1種類 （流出粒子のみ） ・フィッティング因子 遅延係数（深さ方向に可変）、 水流速、拡散係数 	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 2種類 ・フィッティング因子 入口濃度、粒子1の重み 粒子1および2の遅延係数、 粒子1および2の拡散係数 （水流速は流出濃度から）
4	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- 1種類 （流出粒子のみ） ・フィッティング因子 遅延係数（深さ方向に可変）、 水流速、拡散係数 	<ul style="list-style-type: none"> ・フィッティング粒子----- N種類 ・フィッティング因子 入口濃度、 1～Nの粒子の遅延係数、 1～Nの粒子の拡散係数 （水流速は流出濃度から）

Table 2 Comparison between analytical solution and finite differential one of predicting equation of radionuclide migration.

Depth(cm)	Analytical solution	Differential solution
0.0	1.00×10^0	1.00×10^0
4.7	9.10×10^{-1}	9.10×10^{-1}
10.5	7.97×10^{-1}	7.97×10^{-1}
15.2	7.08×10^{-1}	7.08×10^{-1}
21.1	6.01×10^{-1}	6.01×10^{-1}
26.9	5.01×10^{-1}	5.01×10^{-1}
33.9	3.93×10^{-1}	3.93×10^{-1}
40.9	2.99×10^{-1}	2.99×10^{-1}
63.2	1.04×10^{-1}	1.04×10^{-1}
76.0	4.93×10^{-2}	4.94×10^{-2}
98.3	1.05×10^{-2}	1.05×10^{-2}
108.0	4.97×10^{-3}	4.98×10^{-3}
117.0	2.22×10^{-3}	2.23×10^{-3}

Table 3 Influence of error of measured concentration on that of parameters determined by MIGSTEM-FIT.

		Mean value	Standard deviation	error(%)
$\sigma = 0.05$	D	4.96×10^{-1}	4.81×10^{-3}	0.971
	K f	1.98×10^2	1.67×10^0	0.839
$\sigma = 0.10$	D	4.96×10^{-1}	6.39×10^{-3}	1.29
	K f	1.99×10^2	2.20×10^0	1.11
$\sigma = 0.15$	D	4.97×10^{-1}	8.14×10^{-3}	1.64
	K f	1.99×10^2	3.01×10^0	1.51

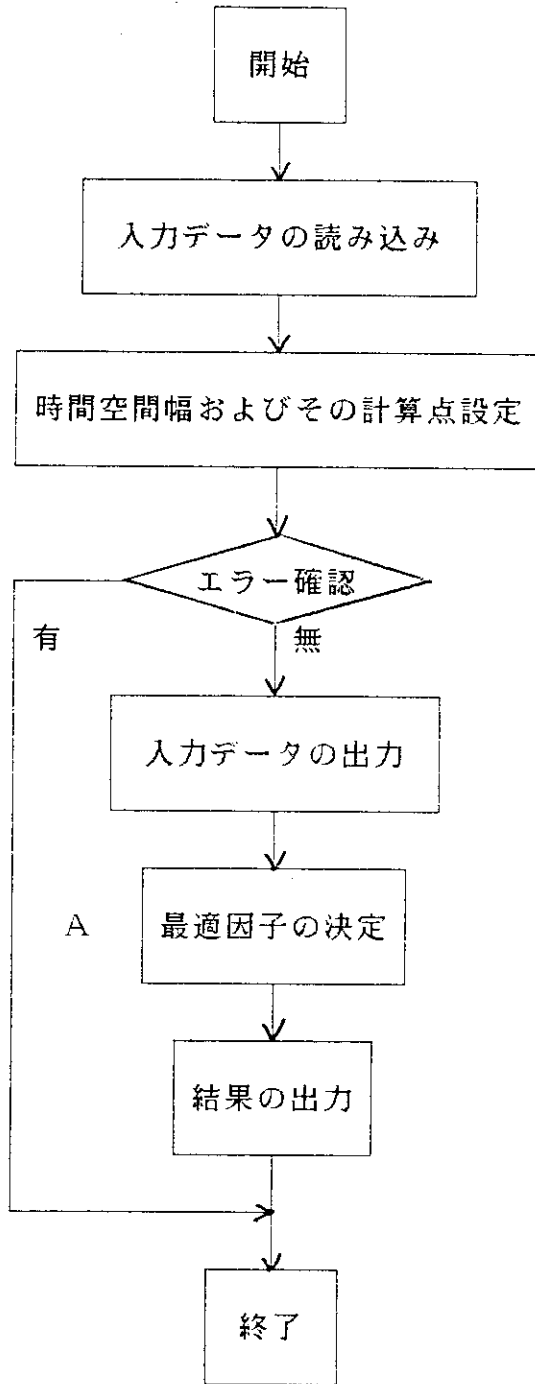


Fig.1 Flow chart of MIGSTEM-FIT.

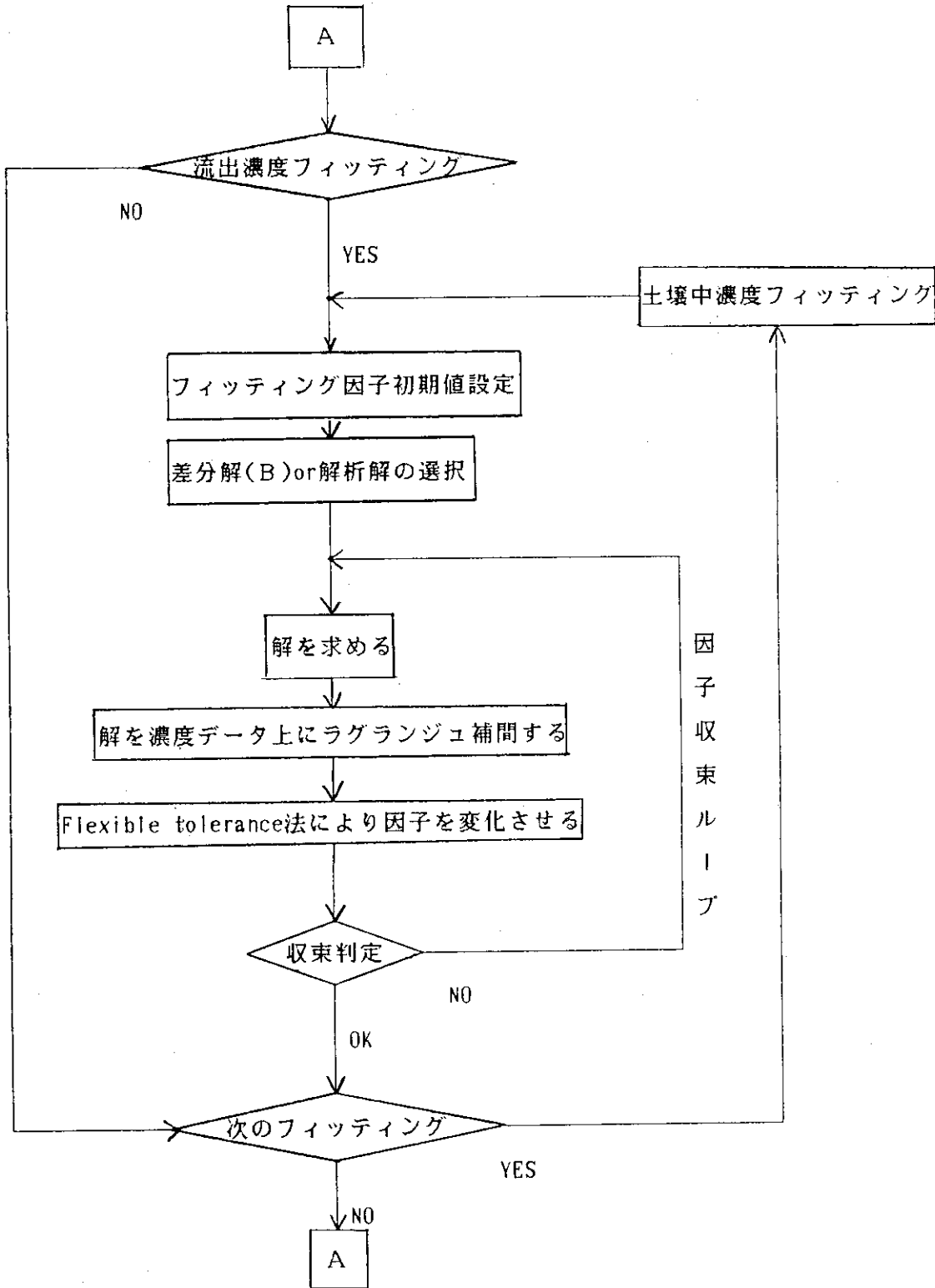


Fig.2 Flow chart for fitting of calculated concentration to measured concentration.

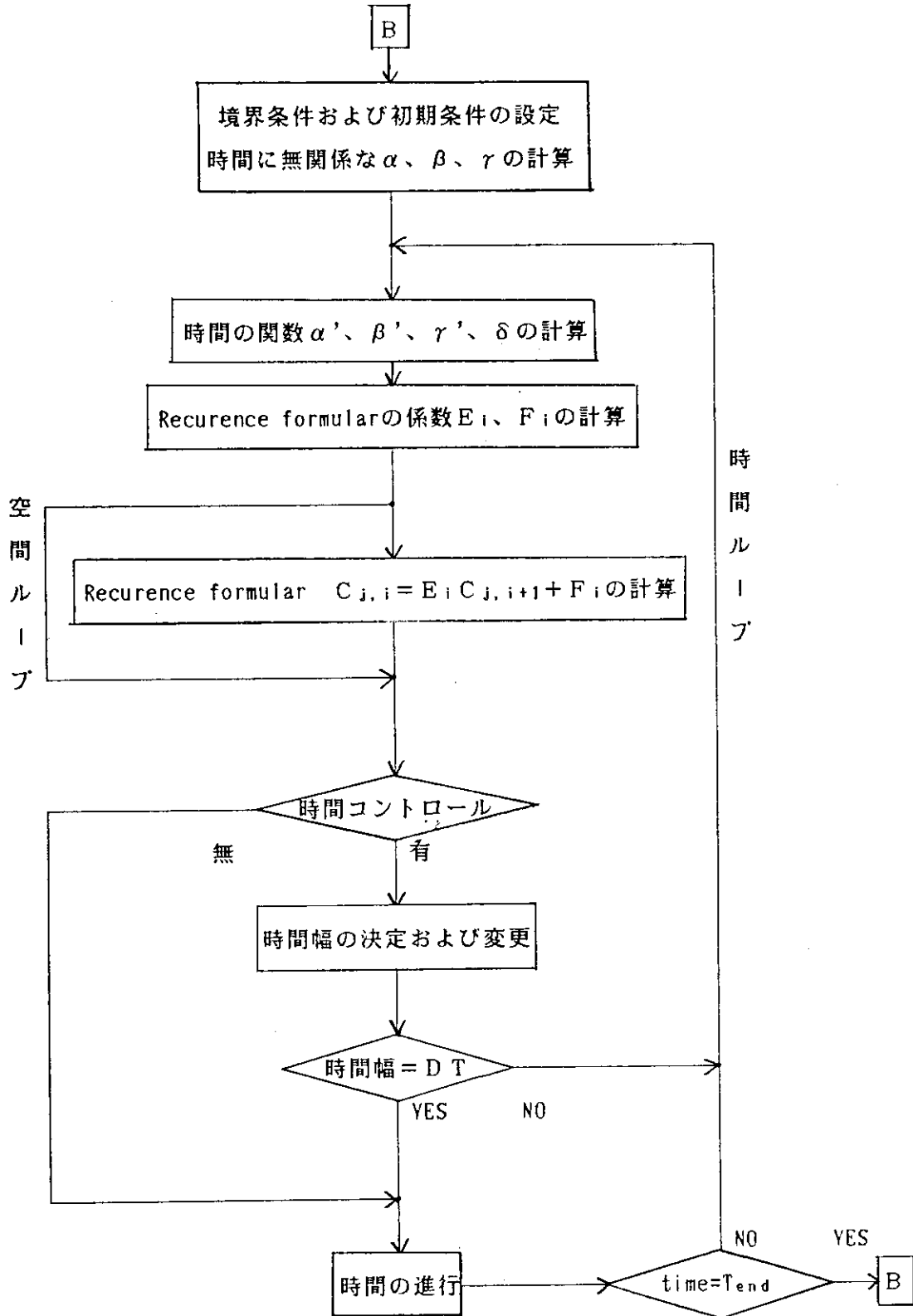


Fig.3 Flow chart for calculating finite differential solution of predicting equation of radionuclide migration.

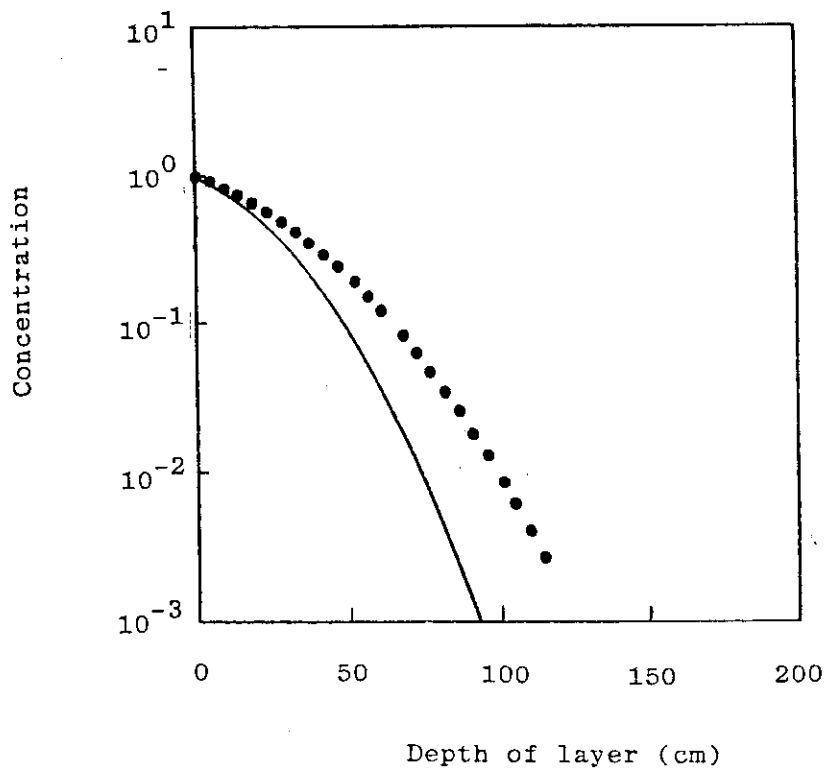


Fig.4 Comparison between input concentration (●) and that calculated for initial values of parameter(-).

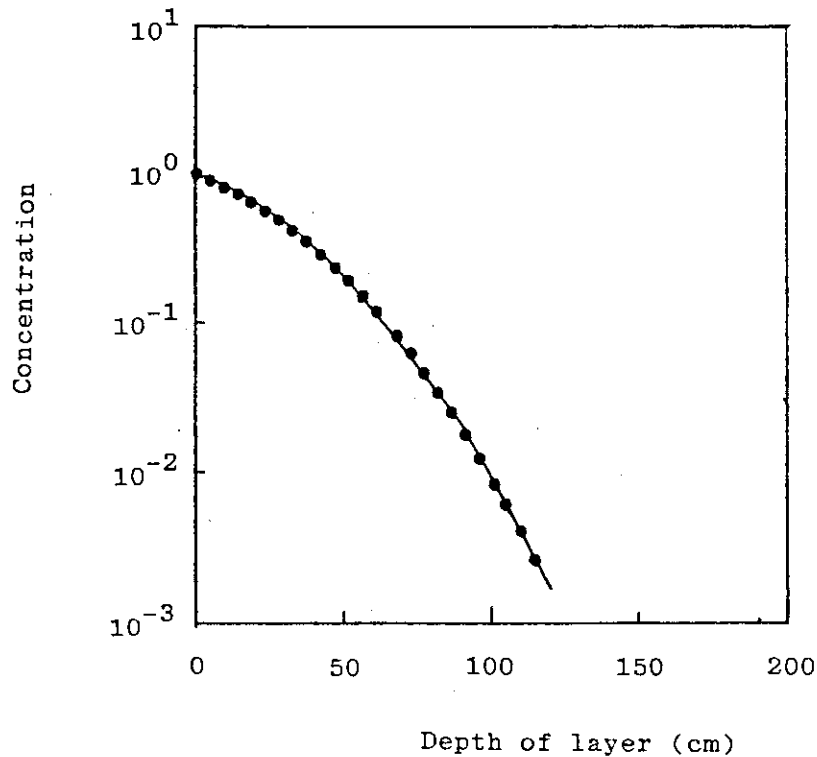


Fig.5 Comparison between input concentration (●) and output concentration from MIGSTEM-FIT (-).