多層構造の人工バリア概念設計のための核種移行遅延機能の簡易評価 - 各層からの定常放出フラックスの一括導出 -

大江俊昭[*1] 稲井隆将[*1] 矢込吉則[*1] 若杉圭一郎[*2]

設計プロセスに核種移行解析の結果をフィードバックしやすくすることを目的に，多層構造の人工バリアが持つ核種移行遅延機能を簡易に評価するために，各層からの定常放出フラックスを導出する手順を整備した．本手順は，人工バリアを構成する個々の領域に対して両端のフラックスを未知数として形式的に与えて定常解を導出し，連立一次方程式を解いて各領域界面における未定フラックスを直接かつ同時に決定するものであり，入口が定フラックスで，出口が自然境界，ゼロ濃度，ミキシングセルの 3 条件に対する定式化を行ない，仮想的な多層人工バリアに対する評価を行った．また，本法は層の追加が容易であり，劣化層などを層間に挿入することで，バリアの一部が状態を変化させた場合にも，迅速かつ確実に解が得られることを示した．
Keywords: 定常フラックス，多層人工バリア，核種移行遅延機能，簡易評価手法

A simple procedure is derived for being included in the design process of the engineered barrier system of the radioactive waste disposal. This procedure is based on the steady state analytic solution of the diffusion-convection equation of the finite domain. Once the fluxes on both edge sides are assumed for each domain in the multi-layered engineered barrier, the unknown fluxes are solved as the solution of the simultaneous equation system of the steady state solution. The present procedure is very simple and stable for obtaining the fluxes and three distinct outlet boundary conditions such as natural boundary, zero concentration, and the mixing cell are formulated. The application of the procedure is readily extended for severer condition, for example, the case of the degradation of one of the layers is examined by inserting additional domains as altered regions and the result indicates the fluxes are obtained fast and soundly without difficulties.
Keywords: steady flux, multi-layered engineered barrier, barrier performance, simple analytic procedure

1 はじめに

中深度処分の規制基準等[1, 2, 3]では，設計段階での長期に亘る線量評価には大きな不確実性を伴うことから，公衆の被ばくを合理的範囲でできるだけ低減させるための対策として，規制期間終了後の生活環境への放射性物質の移動を抑制する性能が一定の水準に達している複数の設計選択肢の中から最も優れたものを選定することを求めている．具体的には，①埋設地設置場所の選択肢の設定，②人工バリアの設計等に係る選択肢の設定，③設計案の中から最終的な設計の選定，に係るプロセス（設計プロセス）の妥当性を確認するとし，審査ガイドにおいて[3]，設計に基づく線量評価の妥当性確認に関する方針が示されている．また，規制基準設定の背景に関する資料[4]によれば，「最も優れた設計」とは線量がより低いものが基本ではあるが，線量以外の理由，例えば，システムの頑健性や評価の不確実性の程度なども考え得るとしている．

これまでの浅地中処分事業の事例などでは，設計プロセスを審査するという視点は明確ではなく，最終的な設計に対する安全評価を行って，線量拘束値などの要求を満たすことを確認することが一般的である．従来の考えをそのまま上述の規制基準に適用すると，安全評価の結果でオプション間の優劣を比較することはできたとしても，施工性や補修の観点，さらには経済性の視点などから総合的に設計の優劣を判断するには，天然バリアや生物圏までを含めた長期の安全評価という方法は必ずしも使いやすいとは言えず，人工バリアに限定し，かつ設計プロセスに取り入れやすい評価方法が望ましいと思われる．一方，放射性廃棄物処分の目的は放射能の環境への放出を極力抑制することであり，核種移行評価の視点を設計プロセスに取り入れることは不可欠であると考えられる．そのため，設計と核種移行評価とを緊密に連携させることが重要であり，それには核種移行解析の結果を設計プロセスに反映させやすい形で性能評価手法を整備することが必要と思われる．また，複数の選択肢の技術的根拠や，最終的な設計を選択するプロセスそのものを明示することも必要となるものと予想されるので，これらを満足するうえでは，設計のプロセスがわかりやすく，透明で追跡性があることを示すことも重要であると考えられる．しかし，精緻な核種移行解析はともすれば計算プロセスが複雑になり，上記のわかりやすさの観点からは結果の解釈が難しくなる場合がある．また，精緻度が上がるにともなって必要な入力情報の量も増し，不確かな情報しかない場合には，かえって評価の不確実性を増してしまう可能性もある．

以上の背景から，処分システム設計に性能評価をリンクさせるための手法，とくに，人工バリアの概略設計段階で設計者が容易に設計とのイタレーションが可能な簡易的な手法について検討を行うこととした．

2 方法

放射能レベルによらず，放射性廃棄物の処分システムでは廃棄体の外側に遮水層，低拡散層，低透水層などの多重バリア層を設けている例[5, 6, 7]が多い．今後のあらたな規制要求に対応するには，なぜそのような層を設置するのか，その層を構成する部材にはどのような性能要求を行い，その満足度をどのような指標で判断するのか，などを明示できることが望ましいと考えられる．そこで，できる限り簡

A simple estimation of the multi-layered engineered barrier performance adaptable in the conceptual design process of radioactive waste repository - Simultaneous determination of steady-state release fluxes from each layers - by Toshiaki OHE (ohe@tepsco.co.jp), Takamasa INAI, Yoshinori YAGOME and Keiichiro WAKASUGI,
＊1 東電設計株式会社
Tokyo Electric Power Services Co.,Ltd.
〒135-0062 東京都江東区東雲 1-7-12
＊2 東海大学
Tokai University
〒259-1292 神奈川県平塚市北金目 4-1-1
(Received 14 February 2023; accepted 9 June 2023)

易で，結果の解釈・説明が容易な手法を検討した．

2.1 解析手法

多層構造の人工バリア中の核種移行挙動の解析では単純な場合を除いては数値解を用いることが一般的である[8,9]．しかし，多数回の繰り返し操作を行いながら漸近していくプロセスをとる設計過程において，性能評価を設計プロセスにリンクさせるための手法として数値解が必ずしも最適とは限らない．例えば，解析情報が十分に得られない設計の初期段階では，詳細な解析よりも結果が瞬時に得られる簡易な手法の方が，全体を俯瞰する上では便利である．そこで，解析解に限定して解法を探ることとした．

多層媒体の解法のひとつに Laplace 変換などの積分変換と数値解法による逆変換を組み合わせた Finite Layer Method がある[10, 11]．この手法はおもに構造解析の分野で用いられているが[12]，拡散方程式[13]や移流・分散方程式[14, 15]にも類似の適用例がある．さらに，一般解が既知であれば，積分変換を省いて解を直接得ることも可能である[16, 17, 18, 19]．ただし，これらの方法は非定常解を求めるものなので，層の数が増えるほど解を求める手順は複雑になって，解析解であっても簡易な評価に適しているとは言い難くなる．一方，定常解は，一般解が判れば境界条件を満足するように立てた連立方程式を解いて，一般解に現れる未定係数を直ちに決めることができ[13]，廃棄物処分の物質移行解析を扱った例も多くある[20, 21, 22, 23, 24, 25, 26]．しかし，3 層以上の多層構造に拡張した例や，性能を求める上で判り易い指標である核種の移行速度（フラックス）を求める解を明示している例[22, 24, 26] は限られている．

本検討の主眼である設計プロセスへのリンクという観点では，設計のレベルによっては，必要なバリアの仕様（材質，寸法など）を決める上で，核種移行挙動の経時変化を逐一追ってピーク値を得ることよりも，想定される最大値がどの程度であるかの概略が判れば充分な場合もあると考えられる．例えば，設計の初期段階では情報も限られ，廃棄体からの核種放出パターンも確定できないと考えられる．そのような段階で非定常解析を行って人工バリアからの核種放出速度の最大値を探ることには大きな不確性を伴うため，人工バリアの概念設計を行うとすれば，定常解を用いて上限のフラックスに対処できる設計を最初に考え，情報の蓄積に従って非定常解析に移行するのも一つの方策である．ただし，核種の半減期と廃棄体からの核種放出時間との関係によっては，定常解では人工バリアからの核種放出フラックスをかなり過大評価する可能性があるが，概念設計段階では過小評価を避ける方が重要と考え，非定常解より簡易な定常解で定式化を行うこととした．これまで，筆者らは崩壊連鎖を含む天然バリア中の核種移行挙動を簡易に評価するための定常解析解を導出し，それが Bateman 方程式に類似した形式の解となることを示し，複雑な解析解を簡素化している[27]．このような背景から，ここでは上述の定常解の例を参考として，3 層以上の多層構造中での一次元定常フラックスを一括して解析的に求める手順（以下本法）を，できるだけ簡易な形で整備することとした．

2.2 概要

廃棄体外側の多層から成る人工バリアを構成する個々の領域を **Fig.1** に示すようにカラムに見立て，カラムが直列に連結している状態を想定して領域境界面でのフラックス F を考える．ここでは，既存の検討例[28]を参考に，各領域の断面積が徐々に大きくなるように設定している．この体系について，核種移行挙動の定常状態を解く問題は 2 点境界値問題であり，体系の両端での条件を指定すれば解ける．図でいえば，廃棄体からの入力フラックス F_0 と人工バリアの出口フラックス F_L が与えられれば良い．ここでフラックスに着目する理由は，人工バリアの核種移行遅延性能を示す場合には，出口において核種放出速度がどの程度低減したかを見るのが簡便であることによる．

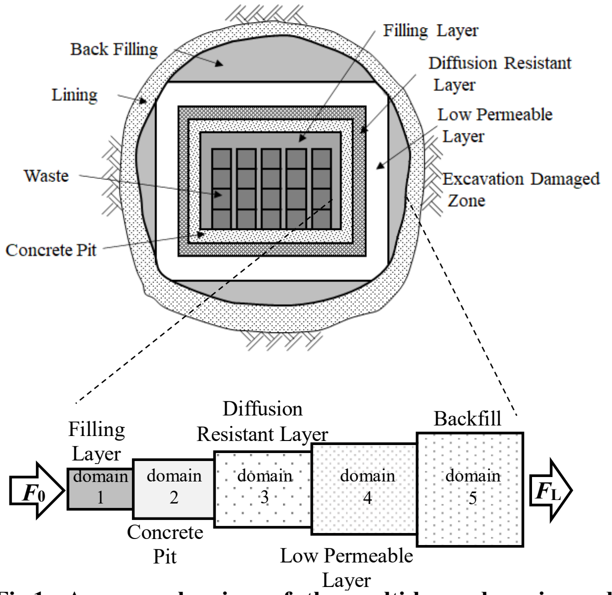

Fig.1 An example view of the multi-layered engineered barrier[6]

2.3 定式化

1 次元移流・拡散方程式の定常解を得るには解析領域の両端でのフラックスあるいは濃度に関する情報を与えなければならない．一例として，単一領域の入口で核種を定フラックス F_0 で負荷し，出口を自然境界条件$(dc/dx)_{x=L} = 0$ としたときのフラックス分布の式を以下に示す．

$$F(x) = K_\alpha \cdot A \cdot e^{-\alpha \cdot x} - K_\beta \cdot B \cdot e^{\beta \cdot x} \tag{1}$$

$$K_\alpha \equiv D_e \cdot \alpha + U_d \tag{2}$$

$$K_\beta \equiv D_e \cdot \beta - U_d \tag{3}$$

$$\alpha \equiv - \cdot \frac{U_d - \sqrt{U_d^2 + 4\lambda^* \cdot D_e}}{2D_e} \tag{4}$$

$$\beta \equiv \frac{U_d + \sqrt{U_d^2 + 4\lambda^* \cdot D_e}}{2D_e} \tag{5}$$

$$\lambda^* \equiv \varepsilon \cdot R \cdot \lambda \tag{6}$$

$$A \equiv F_0 \cdot \frac{\beta \cdot e^{\beta \cdot L}}{K_\alpha \cdot \beta \cdot e^{\beta \cdot L} - K_\beta \cdot \alpha \cdot e^{-\alpha \cdot L}} \tag{7}$$

$$B \equiv F_0 \cdot \frac{\alpha \cdot e^{-\alpha \cdot L}}{K_\alpha \cdot \beta \cdot e^{\beta \cdot L} - K_\beta \cdot \alpha \cdot e^{-\alpha \cdot L}} \tag{8}$$

F_0 ：入口フラックス [Bq m^{-2} s^{-1}]
U_d ：ダルシー流速 [m s^{-1}]
D_e ：実効拡散係数 [m^2 s^{-1}]
L ：媒体長 [m]
λ ：核種の壊変定数 [s^{-1}]
ε ：間隙率 [-]
R ：遅延係数 [-].

上記のように，単一の媒体であれば解析解を得るのは簡単であるが，物性値の異なる領域が複合する場合はそれほど容易ではない．一方，各領域そのものは移流・拡散媒体であるから，そこにも 2 点境界値問題が適用されるので，各領域の両端の境界条件を何らかの形で指定できれば，その領域に限定した定常解を得ることができる．そこで，i 番目の領域出口でのフラックスを暫定的に F_i と記述すると，濃度連続条件から，フラックス F_i は形式的に 2 つの隣り合う界面でのフラックス F_{i-1} と F_{i+1} の線形和として記述できる．例えば，**Fig.2** のような 3 領域が連結した場合は式(9),(10),(11)の 3 つの条件式が得られる．（詳細は Appendix 参照）

$$\Lambda_{01} \cdot F_{01} - \Theta_{11} \cdot F_{11} = \Psi_{12} \cdot F_{12} - \Omega_{22} \cdot F_{22} \tag{9}$$

$$\Lambda_{12} \cdot F_{12} - \Theta_{22} \cdot F_{22} = \Psi_{23} \cdot F_{23} - \Gamma_{33} \cdot F_{33} \tag{10}$$

$$\Lambda_{23} \cdot F_{23} = -\Phi_{33} \cdot F_{33} \tag{11}$$

F_{01} ：領域 1 に流入するフラックス
F_{11} ：領域 1 から領域 2 に流出するフラックス
F_{12} ：領域 2 に領域 1 から流入するフラックス
F_{22} ：領域 2 から領域 3 に流出するフラックス
F_{23} ：領域 3 に領域 2 から流入するフラックス
F_{33} ：領域 3 から領域外に流出するフラックス
$\Lambda_{01}, \Lambda_{12}, \Lambda_{23}, \Theta_{11}, \Theta_{22}, \Psi_{12}, \Psi_{23}, \Omega_{22}, \Gamma_{33}, \Phi_{33}$ ：定係数.

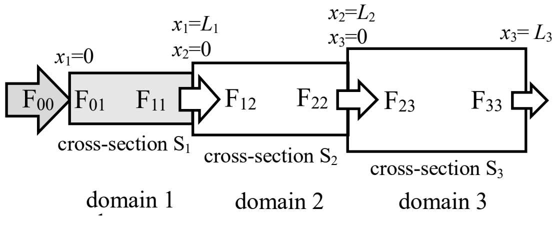

Fig.2 Fluxes across the boundaries of domains

ここで，F_{11} と F_{12}，F_{22} と F_{23} は同じものに見えるが，領域 1，2，3 では断面積が異なるので，質量保存の観点からはフラックス F に断面積 S を乗じた値 $S_i \times F_{i,i} = S_{i+1} \times F_{i,i+1}$ が等しくなる必要がある．つまり，$F_{i,i}$ と $F_{i,i+1}$ には同じ界面でのフラックスをどちら側の領域から見たのかの違いがある．また，式(9)~(11)に含まれる係数は添え字の数字で示される各領域の移行パラメータ（ダルシー流速，実効拡散係数，遅延係数など）のみから予め求めておくことができる．（詳細は Appendix 参照）よって，領域数が n の場合，入口フラックス F_0 を除いた n 個のフラックスについて n 個の方程式が得られるので，領域界面のフラックス F_i は線形連立 1 次方程式(12)の解として求めることができる．

$$\begin{bmatrix} \left(\Theta_{11} + \frac{S_1}{S_2} \cdot \Psi_{12}\right) & -\Omega_{22} & 0 \\ -\frac{S_1}{S_2} \cdot \Lambda_{12} & \left(\Theta_{22} + \frac{S_2}{S_3} \cdot \Psi_{23}\right) & -\Gamma_{33} \\ 0 & -\frac{S_2}{S_3} \cdot \Lambda_{23} & -\Phi_{33} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} F_{11} \\ F_{22} \\ F_{33} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (\Lambda_{01}) \cdot F_{00} \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \tag{12}$$

フラックスが指定された境界の場合，人工バリアの各領域の定常解には次のパターンしか存在しない．すなわち，

①入口フラックスが既知で，出口フラックスが未定の，最上流に位置する領域
②両端のフラックスが未定の中間領域
③出口フラックスが解析的に既知で，入口フラックスが未定の，最下流に位置する領域

の 3 パターンのみで，**Fig.2** は①②③のパターンの最小組み合わせの例である．よって，上述の連立方程式の係数行列は，3 種類のパターンの組み合わせとして機械的に求めることができる．複雑な多重媒体は②の中間領域の数が増えるだけであって，それは，連立 1 次方程式の次元が増すだけであり，解析の困難さにはあまり関係がない．

2.4 解法

上述の式(9)～(11)を n 個の領域を含む系に拡張し，それをマトリックス型式で表すと，係数行列は 3 重対角行列であり，Thomas のアルゴリズム[29]などを用いて効率よく解を求めることができる．ここでは，Microsoft 社の Excel®に付属の Visual Basic for Application を用いてプログラミングを行って計算した．これは，一見すると煩雑な手順に思えるが，各係数の表記に規則性を持たせておくと，プログラミングそのものはそれほど複雑ではない．本法では界面のフラックスを一括して求めるが，両端のフラックスが得られると，その領域内のフラックス分布や濃度分布も容易に求めることができる．（Appendix 式 A9，A8）

Table 1 に掲げる条件のもとで 3 つの領域を連結させて解いた結果の例を，入口フラックス F_0 に対する各領域内のフラックス分布の比として **Fig.3** に示す．なお，放射性壊変による減衰効果が極端に現れないようにするため，核種の半減期は 1000 年とした．図中で領域界面でのフラックスに不連続が見られるが，これは各領域の断面積が異なるためで，フラックスに断面積を乗じた移行速度が連続していることは別途確認済みである．また，同図には汎用有限要素法ソルバーである FlexPDE®を用いて定常状態を計算した結果も示すが，フラックスの不連続も含め，同等の分布が得られており，計算方法の妥当性が確認できる．

解析解を用いる方法は適用できる境界条件に制約があるが，本法は比較的単純な解の組み合わせのみで構成されており，最初に係数行列を作成するプログラムを作成しておけば，計算のための調整などが不要で，あとは物性値の入力だけで安定して素早く解が得られる．

Table 1　Parameters used for the example calculation

Symbol	Unit	domain 1	domain 2	domain 3
D_e	m^2 y^{-1}	0.1	0.1	0.08
U_d	m y^{-1}	0.1	0.083	0.05
ε	-	0.3	0.4	0.4
ρ	kg m^{-3}	2600	2500	2500
K_d	m^3 kg^{-1}	0.2	0.3	0.01
L	m	1	1.2	1.5
S	m^2	1	1.2	2
λ	y^{-1}	6.93×10^{-4}		

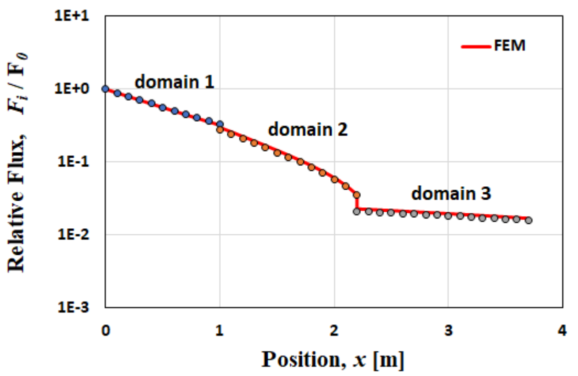

Fig.3　Flux profile inside of the three domains barrier

3　結果

仮想的構成の人工バリアに対して解析を行ない，本法の適用性を確認した．また，多重の人工バリアを有する処分システムの簡易性能評価手法である 4 因子公式[30, 31]を取り上げ，本法との比較を行った．

3.1　多層人工バリアに対する適用性

3.1.1　移流支配

仮想的構成の人工バリアの断面の寸法を **Fig.4** に，また，各領域の物性値を **Table 2** に示す．

各領域の断面積 S は坑道の長さに領域の高さを乗じたものになるが，坑道長さの制約を避けるため，ここでは単位長さの坑道を想定し，領域全周の下流側 1/4 を対象として領域高さを決め，それから断面積 S を算出した．なお，人工バリアの断面は正方形に単純化している．

図からわかるように各領域の断面積（**Table 2** の S は単位坑道長さ当り）は異なり，領域通過流量が保存されるように各領域でのダルシー流速を設定している．各領域のペクレ数は 1 以上であり，核種移行上はいずれも移流支配の領域にある．入口での核種供給フラックスは，簡単のため単位当たりの量 1 Bq m^{-2} y^{-1} に規格化して計算した．

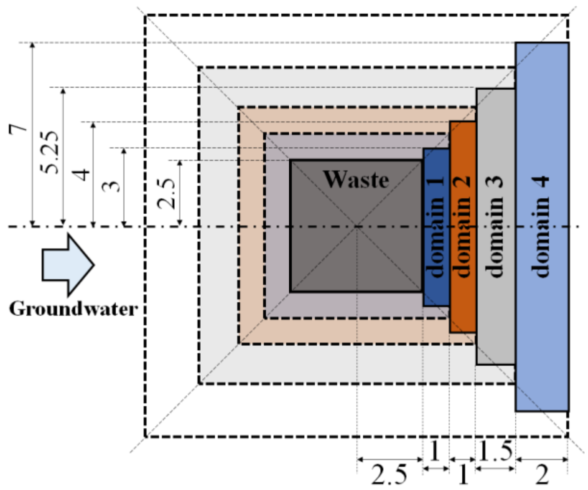

Fig.4　Dimensions of the hypothetical barrier system (unit : m)

Table 2　Parameters used for the calculation of the hypothetical engineered barrier system

Symbol※	domain 1	domain 2	domain 3	domain 4
D_e	0.0252	0.0631	0.0252	0.0315
U_d	0.143	0.107	0.0817	0.0613
P_e	5.67	1.70	4.86	3.89
ε	0.2	0.3	0.4	0.5
ρ	2600	2500	2650	2650
K_d	0.1	0.1	0.3	0.01
R	1041	584	1194	27.5
L	1	1	1.5	2
S	6	8	10.5	14
λ	6.93×10^{-4}			

※　Units are the same as shown in **Table 1.**

表中の領域 1 のダルシー流速は仮想的に設定したものであるが，多層構造の人工バリアにおける流速を設定することが煩雑では本法の簡便さが生きないので，できるだけ簡易に設定できることが望ましい．例えば，多重円環理論[30,31]などを適用するのも一法であろう．

入口フラックス F_0 に対する各領域内のフラックス分布を解析した結果を **Fig.5** に示す．図から判るように，入口フラックスは，4 層領域から成るバリアが持つ核種移行抑制機能によって，出口では約 1/500 に低減している．

Fig.6 は各領域の出口での放出速度（フラックス×断面積）と入口での流入速度の比，つまり，移行速度の低減率を示した．図を見ると領域 3 の低減効果が最も大きいことが判る．これは **Table 2** の遅延係数 R が最も大きいことからある程度予想できるが，ほぼ同じ遅延係数を持つ領域 1 の低減率がそれほど大きくないのは，ダルシー流速が領域 3 の約 2 倍あるので移流効果がやや大きく現れ，かつ，断面積が小さく媒体長が領域 3 よりも短いためである．このように，本法は人工バリア全体が持つ移行抑制機能の中で，ど

の領域が有効に機能しているかを判断しやすい形で出力することができるので，性能改善や，部材寸法の最適化などの設計プロセスに反映しやすいと思われる．

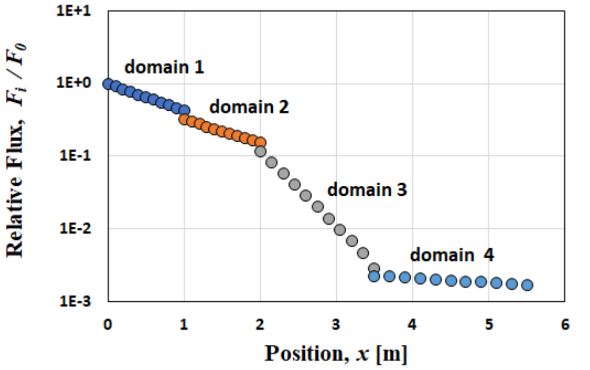

Fig.5 Flux profile of the hypothetical engineered barrier system consisting of four domain barriers

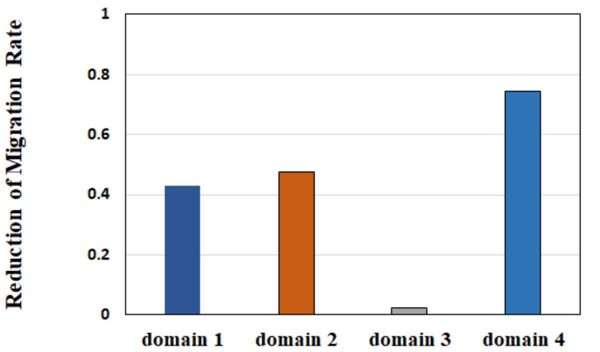

Fig.6 Reduction of the migration rate in each domain

3.1.2 4 因子公式との対比

多重のバリアからなる処分システムの性能を簡易に評価する有力な手法である 4 因子公式[30, 31]の中の人工バリアの部分を取り上げ，本法との対比を行った．

4 因子公式は，大略的に見れば，多層の要素からなる人工バリアを単一の要素に平均化して評価する手法であると言える．例えば，移流による移行パラメータ f_{conv}[y^{-1}] は単純に施設浸透水量 W[m^3 y^{-1}] と，間隙率 ε と施設体積 V との積である間隙体積 $\varepsilon \cdot V$[m^3] から求めた年間当たりの液交換率として定義され，核種を含む間隙水が年間当たりにどの程度の割合で人工バリアに流入し流出するかを示している．定常状態を仮定しているので，流入量と流出量は同じである．また，拡散による移行パラメータ f_{diff} は，各要素の拡散面積と拡散距離で重み付けした実効拡散係数の平均値を使って，単位 Bq 当りのインベントリに対する定常拡散速度を当てはめたものである．各々独立に計算した移流と拡散のパラメータは収着効果がない場合の移行率となるので，両者の和をとって，それを平均化した遅延係数で除すことで，収着効果を考慮した人工バリアからの実効的な移行率 η [y^{-1}] が算定される．

人工バリアの移行率が定まると，人工バリアからの核種放出速度は次の微分方程式の解として得られる．なお，Q_{EBS} は人工バリアを 1 つのセルと見なしたとき，セル内に存在する核種量である．

$$\frac{d\,Q_{EBS}}{d\,t} = \xi \cdot Q_0 \cdot e^{-(\xi+\lambda)\cdot t} - (\eta+\lambda)\cdot Q_{EBS} \tag{13}$$

Q_{EBS}　：人工バリア内の核種量 [Bq]
ξ　：廃棄体からの核種の溶出率 [y^{-1}]
η　：人工バリアからの移行率 [y^{-1}]
Q_0　：初期インベントリ [Bq].

上記式の積分から出口フラックスは次のように得られる．

$$F_{L,4FF} = \frac{Q_0}{S_{EBS}} \cdot \frac{\eta \cdot \xi}{\xi - \eta}\left[e^{-(\eta+\lambda)\cdot t} - e^{-(\lambda+\xi)\cdot t}\right] \tag{14}$$

S_{EBS}　：人工バリアの平均移行断面積 [m^2]

一方，入口フラックスは以下のように与えられるので，式(14)と式(15)から，出入口のフラックスが算出できる．入口の境界条件が異なるため，本法と 4 因子公式の結果を同列に論じることは難しいが，移行率ではなくフラックスを算出することで，本法と同じ基準で比較するようにした．

$$F_{0,4FF} = \frac{Q_0(\eta+\xi)}{S_{EBS}} \cdot e^{-(\lambda+\xi)\cdot t} \tag{15}$$

解析上のパラメータを平均化する手順はここでは省略するが，**Table 2** に掲げた条件について文献[30]の記載に従ってパラメータの平均値を求め，出入口でのフラックスを算定すると **Fig.7** のようになる．なお，廃棄体からの核種溶出率 ξ は 10^{-4} y^{-1} とした．

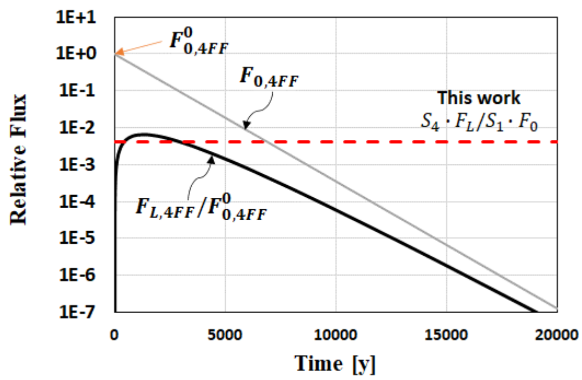

Fig.7 Outer and inner fluxes calculated by the four factor formula with comparison of the result by this work

同図には 4 因子公式の初期入口フラックスを 1 Bq m^{-2} y^{-1} に規格化した場合の出口フラックスを初期入口フラックスで除した値（$F_{L,4FF}/F^0_{0,4FF}$），すなわち核種移行速度の低減率と，本法で得た移行速度の低減率（出入り口でのフラックスに断面積を乗じて得た移行速度の比 $S_4 \cdot F_4 / S_1 \cdot F_0$）を比較して示す．引用文献[30]によれば，人工バリアの性能指標としては，放出率の最大値を用いるとしており，**Table 2** に示す移流支配の解析条件の下では，本法で得た結果は 4 因子公式から得られる最大値と同等であった．なお，このケースについても **Fig.3** と同様に有限要素法による数値解

析の結果と本法が同等の結果を示していることを確認済みである．

3.1.3　拡散支配

上述の解析で用いた最下流領域の外側境界条件は自然境界，すなわち，移流フラックスのみを考慮した条件である．これは拡散が支配的な場合には適切ではないので，ここでは拡散速度の最大値を求めることとし，外側境界面での濃度勾配が最大となるように，境界濃度をゼロとおいた．これは，解析上は最下流領域出口での拡散フラックスを過大に評価する一方で，移流フラックスを無視することになる．

$$c\big|_{x=L} = 0 \tag{16}$$

ゼロ濃度境界の場合でも，単に最下流領域に対する定常解の形を変えるだけで対応ができる．具体的には，最下流領域に関する係数の式をいくつか書き換えればよい．(詳細は Appendix 参照)

Table 2 に掲げるダルシー流速を 1 桁下げて，各領域のペクレ数が 1 を下回る条件において解析した結果を **Fig.8** に示す．図の縦軸は，入口フラックスを 1 Bq m^{-2} y^{-1} に規格化した場合の各領域のフラックスに断面積を乗じた移行速度 [y^{-1} Bq^{-1}] を示している．図からは，領域の界面で移行速度が連続していることが確認できる．また，**Fig.5** の自然境界の結果を移行速度で比較すると，当然ながら，流速を下げているので領域 4 出口での放出速度の値は約 1/50 に減少している．

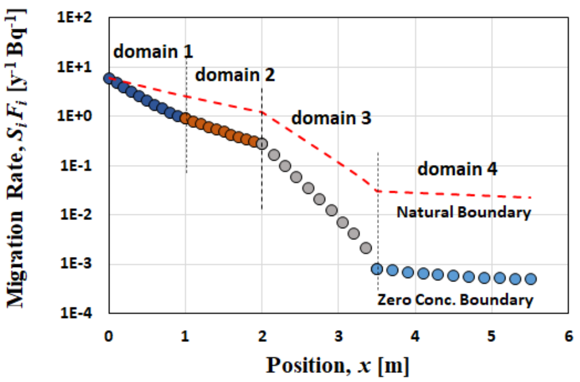

Fig.8　Profiles of the migration rates passing through domains with adopting the zero concentration boundary condition

3.2　拡張性

本法は多層構造に対して，その層の数を増すことが容易にできる利点がある．そこで，①多重バリアの外側に掘削損傷領域がある場合，②ある層が劣化し初期の性能を発揮できない場合，の 2 ケースについて解析し，本法の拡張性を確認した．

3.2.1　掘削損傷領域

掘削損傷領域(Excavation Damaged Zone, 以下 EDZ)を完全混合ミキシングセルと仮定し，領域 4 の外側に新たな領域として付加した．これは領域 4 の外側に岩盤の EDZ が接し，そこを流れる地下水によって人工バリアから EDZ に流出した核種が瞬時に均一混合され流出すると仮定するものである[32, 33]．そして定常状態においては次式が成り立つものと考えられる．下式の左辺は上流領域から EDZ への核種の流入速度を，右辺は EDZ からの流出速度を示し，定常状態では両者が等しくなければならない．

$$S\cdot\left[U_d\cdot c\big|_{x=L} - D_e\cdot\frac{dc}{dx}\bigg|_{x=L}\right] = Q_{mix}\cdot C_{mix} \tag{17}$$

S, L, U_d, D_e：EDZ に隣接する上流領域に対する値
Q_{mix}　：ミキシングセル内の流量 [m^3 y^{-1}]
C_{mix}　：ミキシングセル内の核種濃度 [Bq m^{-3}].

議論を単純にするために式(17)の拡散フラックスを物質移動の式[34]に置き換えると，

$$U_d\cdot c\big|_{x=L} + k_f\cdot\left(c\big|_{x=L} - C_{mix}\right) = \frac{Q_{mix}}{S}\cdot C_{mix} \tag{18}$$

k_f　：物質移動係数 [m y^{-1}]

これから，ミキシングセル内の濃度と領域 4 の外側境界濃度との間に次の関係が見いだせる．

$$C_{mix} = f\cdot c\big|_{x=L} \tag{19}$$

$$f = \frac{k_f + U_d}{k_f + Q_{mix}/S}$$

上式はミキシングセル内の濃度が領域 4 の外側境界濃度を希釈したようになることを表し，式の右辺の係数 f は見かけの希釈率に相当する．つまり，Danckwerts 境界条件の議論にもあるように[35, 36]，領域 4 と EDZ との界面で濃度の不連続があることになる．

ミキシングセルモデルを採用した場合でも，ミキシングセルの外側境界条件は自由境界と扱えるので，解析では単に最下流領域の外側に領域を一つ加え，領域 4 は両端のフラックスが拘束される中間領域として扱えばよい．ただし，隣り合う 2 つの領域の界面で濃度が等しいとおいて定式化しているので，ここでは式(19)を利用して，領域の界面濃度が異なるようにした．また，本法では各領域を移流・拡散媒体として扱うので，媒体内には濃度分布が形成される．一方，ミキシングセル内の濃度分布は均一としているので，ここでは意図的にミキシングセルの長さを短く L=0.1[m]とすることで，セル内の濃度分布が均一にみなせるように設定して解析した．式(18)中の物質移動係数 k_f は流速などの複雑な関数となるので[37, 38]，ここでは k_f そのものを明示的には与えずに，k_f を含む一括した因子の希釈率 f を 0.01～1 の範囲で変化させて試算を行った．

Table 2 に掲げるダルシー流速を 1 桁下げて拡散支配領域で解析した結果を **Fig.9** に示す．図の縦軸は入口フラックスを 1 Bq m^{-2} y^{-1} に規格化した場合の核種の移行速度である．

Fig.9 の例では希釈率 f が小さくなるほどミキシングセル内の濃度が下がり系外への流出量が小さくなるため，領域 4 からの放出速度も小さくなっているが，f が 0.01 の場合でも上限 1 との差は顕著ではないので，現実的には安全側の観点から f=1 としても差し支えがない．また，**Fig.8** のゼロ濃度境界の結果と比較すると，f=1 の場合でも領域 4 の放出速度がゼロ濃度境界の場合よりもやや小さいものの，

ほぼ同じ結果になっており，拡散場において境界条件の違いを検討した結果[39]と同じように，ゼロ濃度境界が安全側の設定であることがわかる．

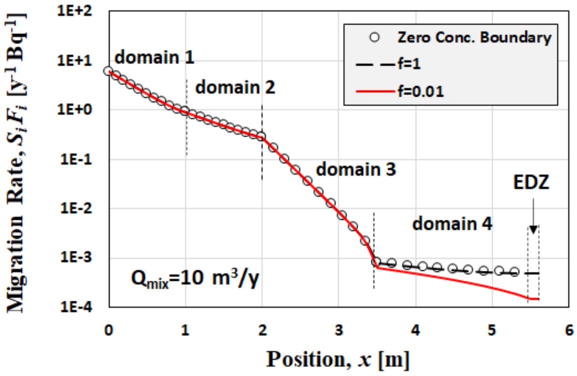

Fig.9　Profiles of the migration rate passing through domains with adopting the mixing cell boundary condition

3.2.2　劣化の影響

バリア内のある層が劣化することによる核種移行遅延機能の変化を，劣化層を層間に挟み込む方法で評価をおこなった．具体的には最も移行遅延機能の高い **Table 2** の領域 3 の下流側 1/3 の部分（domain 33）で実効拡散係数が 3 倍に，1/3～2/3 の部分（domain 32）で 2 倍に，また同じ部分で分配係数がそれぞれ 1/4 倍と 1/2 倍になったとし，領域 3 の上流側の domain31 を含むその他の領域（domain1, domain2, domain4）の値は変わらないものとした．本来であれば，劣化によって地下水流速にも変化が出ると思われるが，地下水流動解析とのリンクを施していないので，ここでは流速は変わらないとした．必要ならば，前述の多重円環理論などから値を得て流速を設定してもよい．

前述の拡散支配領域の流速設定のものとで，ゼロ濃度境界を採用した場合の結果を **Fig.10** に示す．図の縦軸は **Fig.8, 9** と同様に入口フラックスを 1 Bq m^{-2} y^{-1} に規格化した場合の核種の移行速度である．**Fig.8** との比較から領域 3 の一部の劣化により領域 4 からの放出速度が劣化のない場合よりも約 1 桁増加していることがわかる．これは，領域 33 において分配係数を小さく設定することで遅延係数が約 1/4 になり，実効拡散係数も 3 倍大きく設定していることが主な原因である．

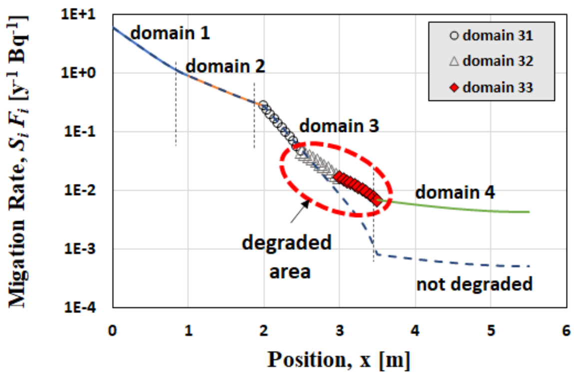

Fig.10 Profiles of the migration rate passing through domains in the case of the degradation of domain 3

4　本法の特徴と設計プロセスへの活用

本検討では，最下流領域の外側境界条件が自然境界とゼロ濃度境界の 2 つの場合について例示したが，境界条件は一般的なディリクレ，ノイマン，ロビン，あるいはその他の条件であっても解析的にフラックスと濃度の解がわかれば本検討の手順はひろく適用可能である．例えば，難溶性核種が溶解度制限によって定濃度で廃棄体から放出される場合には，フラックスではなく濃度を未知数として連立方程式を立てて各領域内の濃度分布を表す式を求め，そこからフラックスを求めればよい．連立方程式の係数の形が変わるが，出てくる因子を導出する手順は全く同じである．そして，これまで述べてきたことから，本検討で示した手順は多層領域からなる人工バリアの持つ核種移行遅延機能を，簡便に評価可能な手法であることがわかる．

本法を活用する方法については，設計検討事例を参考に **Fig.11** に示す設計の流れを考え，概念設計段階において人工バリアの設計諸元を設定する際に性能確認の目的で利用することを想定している．

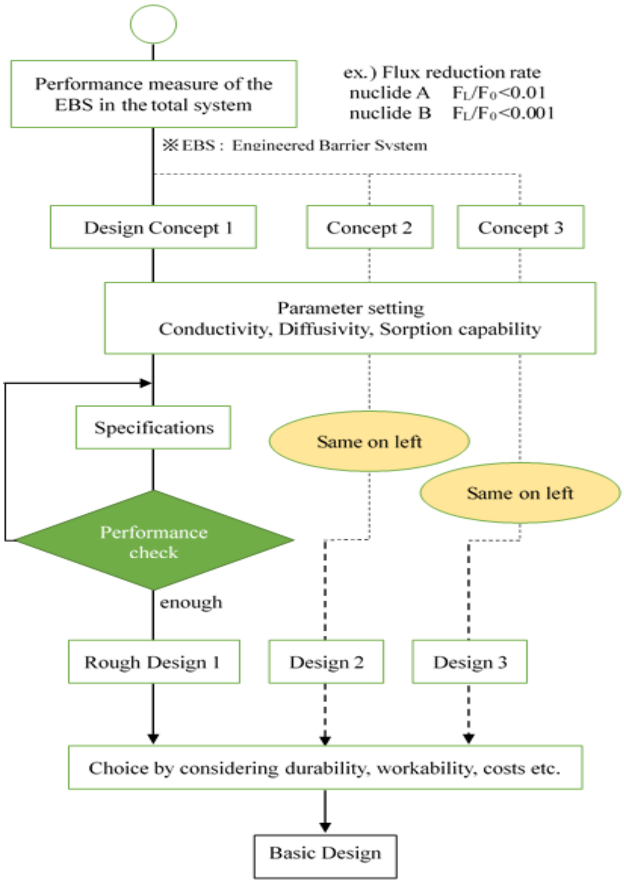

Fig.11 Flow diagram of the engineered barrier system design process

上記流れでは，①人工バリア全体の中で個々のバリアが核種移行遅延性能に対してどのような役割を果たしているかを視覚的かつ定量的に判断することが容易であり，②入力も簡単で繰り返し計算に向いており，設計者自身で部材寸法などの設計上のパラメータを変化させて性能の違いを比較することが容易にできる，という本法の特徴を生かす

ことで設計作業の効率化にもつながるものと期待している．

なお，実際の設計検討では，性能確認からのフィードバックは設計諸元のみならず人工バリア概念など複数の検討項目にも反映されると考えられ，**Fig.11** に示したものよりさらに複雑になることが予想される．その場合においても，本検討で構築した手順の特徴を生かせば反復的検討がし易いものと考えられる．

5 まとめ

核種移行解析の結果を設計プロセスに反映させやすい形で性能評価手法を整備することを目的に，多層構造の人工バリアが持つ核種移行遅延機能を簡易に評価する方法として，人工バリアを構成する個々の領域に対するフラックスを未定変数として連立方程式をたて，それを解いて各領域の界面におけるフラックスを一括して決定する手順を示した．

本法の妥当性を有限要素法による数値解析で確認するとともに，仮想的な 4 層構造の人工バリアに対して核種移行遅延機能を解析し本法の応用性を評価した．その結果，同じく簡易評価手法である 4 因子公式と同等の結果が得られることがわかった．また，本法は領域を追加することが極めて容易であり，掘削損傷領域を考慮した場合は最下流端にミキシングセルを追加することで，また，構造の一部が劣化し移行遅延機能が損なわれた場合には劣化層を間に挟み込むことで，各々容易に解析できることを示した．

本法には定常フラックスという制約があるが，設計の初期段階で人工バリアの仕様を検討するような場合には，フラックスの経時変化を知ることよりも各々の領域の持つ核種移行遅延機能を相対的にみることが求められる場合があると考えられる．本法は簡便さや安定性などの優れた特徴があり，設計の初期段階で，処分システムの各要素にどのような性能を付与するのか，またそのためにはどのような部材・寸法が適しているのかなどを照査するうえで頻繁に利用するには使い易い手法と思われる．また，安定性や簡便性を生かして，多数回の演算を行う不確実性解析への利用も考えられる．ただし，簡易な手法であることから，処分システム全体の安全性を詳細に評価する際に利用するには適していないことは改めて述べておきたい．

参考文献

[1] 第二種廃棄物埋設施設の位置，構造，および設備の基準に関する規則．平成 25 年原子力規制委員会規則第 30 号．

[2] 第二種廃棄物埋設施設の位置，構造，および設備の基準に関する規則の解釈．平成 25 年 11 月 27 日，原管廃発第 1311377 号，原子力規制委員会決定．

[3] 第二種廃棄物埋設施設に関する審査ガイド．令和 3 年 9 月 29 日，原子力規制委員会決定．

[4] 前田敏克 他: 中深度処分の規制基準の背景及び根拠．NRA 技術ノート，NTEN-2022-0001，原子力規制庁 (2022).

[5] 経済産業省資源エネルギー庁: 放射性廃棄物について．https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_gas/nuclear/rw/gaiyo/gaiyo01.html (accessed 2022-8-09).

[6] 社団法人土木学会 エネルギー委員会 低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分に関する研究小委員会: 余裕深度処分の安全評価における地下水シナリオに用いる核種移行評価パラメータ設定の考え方. p.9 (2008).

[7] 原子力発電環境整備機構: 包括的技術報告: わが国における安全な地層処分の実現－適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築 概要編. NUMO-TR-20-02, p.38 (2021).

[8] Bo, P., Carlsen, L.: DIFMIG - A computer program for calculation of diffusive migration through multi-barrier systems. Risø National Laboratory. Risø-M No.2262 (1981).

[9] Olszewska, W., et al.: Multi-barrier system preventing migration of radionuclides from radioactive waste repository. *NUKLEONIKA* **60**(3)**,** pp.557-563 (2015).

[10] Rowe, R. K., Booker, J. R.: A finite layer technique for calculating three-dimensional pollutant migration in soil. *Geotechnique* **36**(2), pp.205-214 (1986).

[11] Jingjing, F.: Leakage Performance of the GM + CCL liner System for the MSW landfill. *Scientific World Journal* (2014). Article ID 251465. http://dx.doi.org/10.1155/2014/251465.

[12] Booker, J. R., Small J. C.: Finite layer analysis of consolidation. *I, Int. J. Numer. Analyt. Meth. Geomech* **6**, pp.151-171 (1982).

[13] Car, E. J., Turner, I. W.: A semi-analytical solution for multilayer diffusion in a composite medium consisting of a large number of layers. *Applied Mathematical Modelling* **40**, pp.7034-7050 (2016).

[14] Liu, C., Ball, W., Ellis, J. H.: An analytical solution to the one-dimensional solute advection-dispersion equation in multi-layer porous media. *Transport in Porous Media* **30**, pp.25-43 (1998).

[15] Car, E. J.: New semi-analytical solutions for advection-dispersion equations in multilayer porous media. *Transp. Porous Med.*, **135**, pp.39-58 (2020).

[16] Carslaw, H. S., Jaeger, J. C.: *Conduction of Heat in Solids*, 2nd ed., pp.87-88, Oxford (1986).

[17] Mikhailov, M. D., Özişik, M. N., Vulchanov, N. L.: Diffusion in composite layers with automatic solution of the eigenvalue problem. *Int. J. Heat Mass Transfer* **26**(8), pp.1131-1141 (1983).

[18] Foose, G., Benson, C. H., Edil, T. B.: Analytical equations for predicting concentration and flux from composite liners. *Geosynthetics International* **8**(6), pp.551-575 (2001).

[19] Lu, X., Tervola, P., Viljanen, M.: An efficient analytical solution to transient heat conduction in a one-dimensional hollow composite cylinder. *J. Phys. A: Math. Gen.* **38**, pp.10145-10155 (2005).

[20] Oliver, D. L.: Sensitivity of performance assessment of the

engineered barriers to nuance of release rate criteria, Site Characterization Strategy. *WM symposia 87 Conference Proceedings*, pp.131-136 (1987).
[21] Ueng, T-S., O'Connell, W. J.: Near-field diffusion releases through one and two finite planar zones from a nuclear waste package. *Nucl. Technol.* **108**, pp.80-89 (1994).
[22] Smith, P. A., Curti, E.: Some variations of the Kristallin-I near-field model. Technical Report 95-09, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste NAGRA (1995).
[23] Chen, Y., et al.: An analytical solution for one-dimensional contaminant diffusion through multi-layered system and its applications. *Environ. Geol.* **58**, pp.1083-1094 (2009).
[24] 大井貴夫: 放射性廃棄物地層処分の人工バリアシステムの応答特性を把握するための近似解析解の導出. NUMO-TR-10-06, 原子力発電環境整備機 (2011).
[25] Guan, C., et al.: An analytical model for solute transport through a GCL-based two-layer liner considering biodegradation. *Sic. Total Environ.* **466-467**, pp.221-231 (2014).
[26] Xie, H., et al.: Steady-state analytical models for performance assessment of landfill composite liners. *Environ. Sci. Pollut. Res.* **22**, pp.12198-12214 (2015).
[27] 高橋裕太, 大江俊昭, 若杉圭一郎: 逐次放射性壊変式との類似性に着目した崩壊連鎖を含む放射性核種の多孔質媒体中移行定常解の簡易表現. 東海大学工学部紀要 **56**(2), pp. 21-26 (2016).
[28] 酒谷圭一 他: GoldSim による余裕深度処分を対象とした地下水シナリオ評価ツールの作成. JAEA-Data/Code 2013-015, 日本原子力研究開発機構 (2013).
[29] スハス V. パタンカー: コンピュータによる熱移動と流れの数値解析. 水谷幸夫･香月正司訳, 森北出版, 東京, pp.54-56 (1985).
[30] 青木広臣, 鈴木俊一, 川上博人: 放射性廃棄物処分施設の安全特性把握のための4因子公式. JNES-RE-2012-0018, 原子力安全基盤機構 (2012).
[31] 鈴木俊一 他: 多重人工バリアシステムを有する放射性廃棄物処分施設の安全性能評価手法に関する考察. 原子力バックエンド研究 **15**(2), pp.87-98 (2009).
[32] Wakasugi, K., Makino, H., Robinson, P.: The development of MESHNOTE code for nuclide migration in the near field. JNC TN8400-99-095, Japan Nuclear Cycle Development Institute (1999).
[33] 核燃料サイクル開発機構: 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－. 分冊3 地層処分システムの安全評価, 平成11年11月26日 (2000).
[34] Romero, L., Moreno, L., Neretnieks, I.: The fast multiple-path NUCTRAN model – calculating the radionuclide release from a repository. *Nucl. Technol.* **112**, pp.99-107 (1995).
[35] 伊東章: Excel で解く化学工学 10 大モデル管型反応器モデル-Danckwerts の境界条件-. 化学工学 **79**(8), pp.647-649 (2015).
[36] van Genuchen, M. TH., Parker, J. C.: Reply to "Comments on 'Boundary Conditions for Displacement Experiments through Short Laboratory Soil Columns'". *Soil Sci. Soc. AM. J.* **58**, pp.991-992 (1994).
[37] 伊東章: Excel で解く化学工学 10 大モデル境界層理論とシャーウッド数. 化学工学 **79**(11), pp.1-3 (2015).
[38] Chrysikopoulos, C. V. et al.: Mass transfer coefficient and concentration boundary layer thickness for a dissolving NAPL pool in porous media. *J. Hazard. Mater.* **B97**, pp.245–255 (2003).
[39] 若杉圭一郎, 牧野仁史, 小尾繁: 核種移行解析における掘削影響領域におけるモデルバリエーションに関する検討. 原子力バックエンド研究 **10**(1-2), pp.21-30 (2004).

Appendix

解析解の 3 つのパターンの組み合わせとして最小である 3 つの領域の場合を示す．本文 **Fig.2** に示すように，各領域を独立に評価するので，位置を表す変数 x は各々の領域の入口を原点とする座標で表記する．また，表記を簡単にするため U_d を U，D_eを D とすると，ある領域に対する定常状態における支配方程式は，

$$D\cdot\frac{d^2c}{dx^2}-U\cdot\frac{dc}{dx}-\lambda^*\cdot c=0 \qquad \text{(A.1)}$$

演算子法等により支配方程式を解くと，その解は A と B を未定の係数とおいて，

$$c(x)=A\cdot e^{-\alpha\cdot x}+B\cdot e^{\beta\cdot x} \qquad \text{(A.2)}$$

またフラックスは，

$$F(x)=K_\alpha\cdot A\cdot e^{-\alpha\cdot x}-K_\beta\cdot B\cdot e^{\beta\cdot x} \qquad \text{(A.3)}$$

ここで，α，β，K_α，K_βの定義は本文中の式(2)〜(5)と同じである．

A.1　領域 1 の解

両端のフラックスが固定された領域である．まず，入口境界条件から，

$$F_{01}=K_{\alpha_1}\cdot A_1\cdot e^{-\alpha_1\cdot 0}-K_{\beta_1}\cdot B_1\cdot e^{\beta_1\cdot 0} \qquad \text{(A.4)}$$

また，出口境界条件から

$$F_{11}=K_{\alpha_1}\cdot A_1\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}-K_{\beta_1}\cdot B_1\cdot e^{\beta_1\cdot L_1} \qquad \text{(A.5)}$$

式(A.4)，(A.5)から係数 A_1 と B_1 を求める．

$$A_1=\frac{F_{11}-F_{01}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}}{K_{\alpha_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)} \qquad \text{(A.6)}$$

$$B_1=\frac{F_{11}-F_{01}\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}}{K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)} \qquad \text{(A.7)}$$

式(A.6)，(A.7)から，領域 1 の濃度分布は次式のようになり，両端のフラックスの線形 1 次結合で表される．

$$c_1(x_1)=\left[\frac{K_{\beta_1}\cdot e^{-\alpha_1\cdot x_1}+K_{\alpha_1}\cdot e^{\beta_1\cdot x_1}}{K_{\alpha_1}\cdot K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)}\right]\cdot F_{11} -\left[\frac{K_{\beta_1}\cdot e^{-\alpha_1\cdot x_1}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}+K_{\alpha_1}\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}\cdot e^{\beta_1\cdot x_1}}{K_{\alpha_1}\cdot K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)}\right]\cdot F_{01} \tag{A.8}$$

また，フラックス分布の式も同じように，両端のフラックスの線形 1 次結合で表される．

$$F(x_1)=\left[\frac{e^{-\alpha_1\cdot x_1}-e^{\beta_1\cdot x_1}}{\mathrm{e}^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}}\right]\cdot F_{11} -\left[\frac{e^{-\alpha_1\cdot x_1}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}-\mathrm{e}^{-\alpha_1\cdot L_1}\cdot e^{\beta_1\cdot x_1}}{\mathrm{e}^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}}\right]\cdot F_{01} \tag{A.9}$$

A.2　領域 2 の解

領域 1 の解に対して，両端のフラックスが $F_{01}\to F_{12}$，$F_{11}\to F_{22}$ と置き換わり，パラメータが領域 2 に対する物性値で計算されるだけである．

A.3　領域 3 の解

最終領域には出口境界条件が与えられる．自然境界条件の場合は，

$$-D_3\frac{d\,c_3}{d\,x}\bigg|_{x=L_3}=0 \tag{A.10}$$

これより，係数 A_3 と B_3 が次のように得られる．

$$A_3=F_{23}\frac{\beta_3\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}}{K_{\alpha_3}\cdot\beta_3\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}-K_{\alpha_3}\cdot\alpha_3\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}} \tag{A.11}$$

$$B_3=F_{23}\cdot\frac{\alpha_3\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}}{K_{\alpha_3}\cdot\beta_3\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}-K_{\alpha_3}\cdot\alpha_3\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}} \tag{A.12}$$

これらが与えられると，濃度分布とフラックス分布を表す式は式(A.2)と(A.3)より容易に得られ，両端のフラックスの間に次の関係を導くことができる．

$$\left(\frac{K_{\alpha_3}\cdot\beta_3\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}-K_{\beta_3}\cdot\alpha_3\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}}{\alpha_3+\beta_3}\right)\cdot F_{33} =\left(U_3\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}\right)\cdot F_{23} \tag{A.13}$$

A.4　濃度連続条件

領域界面において濃度が連続する条件を立てる．領域 1 と領域 2 の境界面（$x_1=L_1$，$x_2=0$）での濃度は，次の 2 式より得られる．

$$c_1(L_1)=\left[\frac{K_{\beta_1}\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}+K_{\alpha_1}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}}{K_{\alpha_1}\cdot K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)}\right]\cdot F_{11} -\left[\frac{\left(K_{\alpha_1}+K_{\beta_1}\right)\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}}{K_{\alpha_1}\cdot K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)}\right]\cdot F_{01} \tag{A.14}$$

$$c_2(0)=\left[\frac{K_{\alpha_2}+K_{\beta_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}\right]\cdot F_{22} -\left[\frac{K_{\alpha_2}\cdot e^{-\alpha_2\cdot L_2}+K_{\beta_2}\cdot e^{\beta_2\cdot L_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}\right]\cdot F_{12} \tag{A.15}$$

両者の境界濃度を等しいとおけば次式が得られ，これは 2 つの領域のフラックスの関係式となる．

$$\Lambda_{01}\cdot F_{01}-\Theta_{11}\cdot F_{11}=\Psi_{12}\cdot F_{12}-\Omega_{22}\cdot F_{22} \tag{A.16}$$

$$\Lambda_{01}\equiv\frac{\left(K_{\alpha_1}+K_{\beta_1}\right)\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}}{K_{\alpha_1}\cdot K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)}$$

$$\Theta_{11}\equiv\frac{K_{\alpha_1}\cdot e^{-\alpha_1\cdot L_1}+K_{\beta_1}\cdot e^{\beta_1\cdot L_1}}{K_{\alpha_1}\cdot K_{\beta_1}\left(e^{-\alpha_1\cdot L_1}-e^{\beta_1\cdot L_1}\right)}$$

$$\Psi_{12}\equiv\frac{K_{\alpha_2}\cdot e^{-\alpha_2\cdot L_2}+K_{\beta_2}\cdot e^{\beta_2\cdot L_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}$$

$$\Omega_{22}\equiv\frac{K_{\alpha_2}+K_{\beta_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}$$

次に，領域 2 と領域 3 の境界面（$x_3=0$，$x_2=L_2$）での濃度を表す以下の 2 式から濃度連続の式を求める．

$$c_3(0)=\frac{F_{33}}{U_3(\alpha_3+\beta_3)}\left(\frac{\beta_3}{e^{-\alpha_3\cdot L_3}}+\frac{\alpha_3}{e^{\beta_3\cdot L_3}}\right) \tag{A.17}$$

$$c_2(L_2)=\left[\frac{K_{\alpha_2}\cdot e^{\beta_2\cdot L_2}+K_{\beta_2}\cdot e^{-\alpha_2\cdot L_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}\right]\cdot F_{22} -\left[\frac{\left(K_{\alpha_2}+K_{\beta_2}\right)\cdot e^{-\alpha_2\cdot L_2}\cdot e^{\beta_2\cdot L_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}\right]\cdot F_{12} \tag{A.18}$$

ここで，式(A.16)の表記と同じ規則性を持たせるために，濃度連続の式を次のように表す．

$$\Lambda_{12}\cdot F_{12}-\Theta_{22}\cdot F_{22}=\Psi_{23}\cdot F_{23}-\Gamma_{33}\cdot F_{33} \tag{A.19}$$

$$\Lambda_{12}\equiv\frac{\left(K_{\alpha_2}+K_{\beta_2}\right)\cdot e^{-\alpha_2\cdot L_2}\cdot e^{\beta_2\cdot L_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}$$

$$\Theta_{22}\equiv\frac{K_{\alpha_2}\cdot e^{\beta_2\cdot L_2}+K_{\beta_2}\cdot e^{-\alpha_2\cdot L_2}}{K_{\alpha_2}\cdot K_{\beta_2}\left(e^{-\alpha_2\cdot L_2}-e^{\beta_2\cdot L_2}\right)}$$

$$\Psi_{23}\equiv 0$$

$$\Gamma_{33}\equiv\frac{\alpha_3\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}+\beta_3\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}}{U_3\left(\alpha_3+\beta_3\right)\cdot e^{-\alpha_3\cdot L_3}\cdot e^{\beta_3\cdot L_3}}$$

領域 3 の両端のフラックスに関する関係式(A.13)を，表記を統一して以下のように書き換える．

$$\Lambda_{23} \cdot F_{23} = -\Phi_{33} \cdot F_{33} \tag{A.20}$$

$$\Lambda_{23} \equiv U_3 \cdot e^{-\alpha_3 \cdot L_3} \cdot e^{\beta_3 \cdot L_3}$$

$$\Phi_{33} \equiv \frac{K_{\beta_3} \cdot \alpha_3 \cdot e^{-\alpha_3 \cdot L_3} - K_{\alpha_3} \cdot \beta_3 \cdot e^{\beta_3 \cdot L_3}}{\alpha_3 + \beta_3}$$

このようにして，最終的に 3 つの領域を通過する核種の定常フラックスに関して，式(A.16), (A.19), (A.20) の 3 つの方程式が得られる．未知数は入口を除く界面の 3 つのフラックス F_{11}，F_{22}，F_{33} であるから，これらは連立方程式から解析的に求められる．

A.5　ゼロ濃度境界

最下流領域からの拡散フラックスの最大値を得る場合は，最下流領域 3 の出口濃度をゼロとおく．

$$c_3(L_3) = 0 \tag{A.21}$$

入口フラックスを F_{23} とすれば，$C_3(L_3)$と F_{23} の 2 条件を使って式(A.2)と(A.3)から係数 A_3 と B_3 を決定できるので，領域 3 の境界濃度は

$$c_3(0) = \frac{e^{\beta_3 \cdot L_3} - e^{-\alpha_3 \cdot L_3}}{K_{\alpha_3} \cdot e^{\beta_3 \cdot L_3} + K_{\beta_3} \cdot e^{-\alpha_3 \cdot L_3}} \cdot F_{23} \tag{A.22}$$

式(A.17)の代わりに上式を使って濃度連続の式を解き，式(A.19)に対する係数として以下を得る．

$$\Psi_{23} \equiv \frac{e^{-\alpha_3 \cdot L_3} - e^{\beta_3 \cdot L_3}}{K_{\alpha_3} \cdot e^{\beta_3 \cdot L_3} + K_{\beta_3} \cdot e^{-\alpha_3 \cdot L_3}} \tag{A.23}$$

$$\Gamma_{33} \equiv 0 \tag{A.24}$$

さらに，領域 3 の両端のフラックスの関係式(A.20)の係数を以下に入れ替えれば，ゼロ濃度境界に対する連立方程式を得る．

$$\Lambda_{23} \equiv \left(K_{\alpha_3} + K_{\beta_3}\right) \cdot e^{-\alpha_3 \cdot L_3} \cdot e^{\beta_3 \cdot L_3} \tag{A.25}$$

$$\Phi_{33} \equiv -\left(K_{\alpha_3} \cdot e^{\beta_3 \cdot L_3} + K_{\beta_3} \cdot e^{-\alpha_3 \cdot L_3}\right) \tag{A.26}$$

A.6　ミキシングセル

EDZ を完全混合ミキシングセルと仮定し，領域 3 を EDZ とする．ミキシングセルを想定した場合は，領域 2 の出口濃度と領域 3 の入口濃度に濃度の不連続を仮定するので，領域2と3の界面濃度に関する式(A.17)と(A.18)に次を適用し，

$$c_3(0) = f \cdot c_2(L_2) \tag{A.27}$$

結果として，式(A.19)中の係数のΛ_{12}とΘ_{22}に希釈率 f を乗ずればよい．

A.7　連立方程式

隣り合わせた 2 つの領域の境界面での移動速度が等しくなる条件　$S_i \times F_{i,i} = S_{i+1} \times F_{i\,i+1}$ を用いて，方程式の未知数をすべて領域出口フラックス，すなわち，F_{00}，F_{11}，F_{22}，F_{33} に統一しマトリックス型式で示すと，次のように係数行列が 3 重対角行列の連立方程式が記述される．

$$\begin{bmatrix} \left(\Theta_{11} + \frac{S_1}{S_2} \cdot \Psi_{12}\right) & -\Omega_{22} & 0 \\ -\frac{S_1}{S_2} \cdot \Lambda_{12} & \left(\Theta_{22} + \frac{S_2}{S_3} \cdot \Psi_{23}\right) & -\Gamma_{33} \\ 0 & -\frac{S_2}{S_3} \cdot \Lambda_{23} & -\Phi_{33} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} F_{11} \\ F_{22} \\ F_{33} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (\Lambda_{01}) \cdot F_{00} \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \tag{A.28}$$

領域の数が増える場合は，上記の領域 2 に相当する部分の数が増えるだけで，両端の領域に対する式は，領域 1 と領域 3 の式をそのまま当てはめればよい．