

(41) 岩における放射性核種溶液の分散に関する実験的研究

埼玉大学工学部 正会員 佐藤 邦明
三菱金属(株) (研究生) 〇正会員 佐々木 康夫

1. はじめに.

近年、産業廃棄物とりわけ原子力産業関係の廃棄物処理・処分に関する研究の中で、安全性評価の上から種々の核種の土壌、岩盤中における挙動の把握が極めて重要視されており、種々の研究が試みられている。核種挙動の把握手段の例として、分配係数や分散・拡散係数などが考えられており、それらにっして、比較的容易なバッチ試験やカラム試験などが数多く行われている。しかし、それらの研究のほとんどは土壌や砂、岩の粉砕物を対象にしており、岩そのものを対象にした研究は少ない。一方、土壌や砂、岩の粉砕物を用いて行ったそれらの結果が、岩や岩盤を対象とする問題に、常に適用可能とも考えられない。このような観点から今回、一・二の岩を用い、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr 、 ^{137}Cs の混合溶液によって分散実験を試みたので、その結果にっして報告する。

2. 実験装置と試料

実験は岩専用の耐圧製造水試験装置を用いたが、使用溶液が放射性核種を含むもので、かつ高圧力を作用させて浸透を起させるため、溶液の飛散や漏液が生じないように十分すぎる注意が必要であった。このため、右に描

え溶液タンクと試料のセットされるモールド部分とはニールフィルムを内張りしたステンレス製容器に収納しドラフト内に納めた。図-1には実験装置の概略と試料部分の拡大したものを示した。図の番号に従い装置各部を説明すると、①は溶液および純水を加圧するための高圧窒素がスポンベで、屋外におかれ銅製パイプにより溶液タンク、純水タンクに接続されている。

②は溶液タンクで容量15Lのステンレス製で、その耐圧強度は $12\text{kg}/\text{cm}^2$ 、③は②と同じ寸法のもので、本実験の条件設定や漏液箇所の有無などをチェックするために行う予備実験に使用される純水タンク、④は作用圧力を任意に調整できる圧力調整バルブである。⑤は試料がセットされるモールド、⑥は試料で直径55mm、高さ150mmの円柱形である。⑦は内径0.3mm、外径1mm、長さ75mmの浸透溶液採取パイプで、試料上端から0.025m~0.05m、0.05m~0.70mの2箇所に90°の角度で試料中心まで埋設されている。⑧は外周への漏液防止用に試料外周にコーティングされたエポキシ系樹脂でその厚さは12.5mm、⑨は試料上下面からの漏液を防止するため、モールドに試料セットを行う時に使用されるラバーパッキン、⑩は浸透流量計測用メスシリンダーである。写真-1にはその全容を示してあるが、モールド、試料、圧力調整バルブ、メスシリンダー、溶液タンクはステンレス製容器に収納されている。

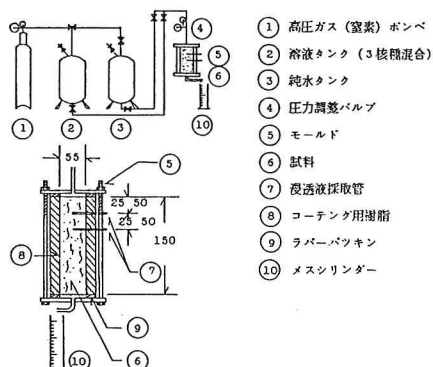


図 - 1 実験装置の概略と試料部分拡大

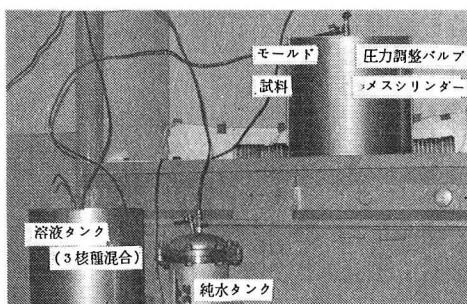


写真 - 1 実験装置全容

実験に供された試料は2種類で茨城県産の楢田花崗岩、神奈川県産の新小松山岩で、それらの物性値は表-1に示してある。両試料とも、そのままの状態では浸透が起りにくく、実験にはかなりの長時間を要すると思われたので、浸透を容易にするため60℃に加熱したのを、

水中急冷により人工的に微細き裂を生じさせた（以下、本文中では人工風化と呼ぶ）。人工風化により空隙率は稀田花崗岩の場合人工風化前の約7.5倍、新小松安山岩の場合は約2倍に増加している。

3. 実験方法と使用核種

実験は試料上面から所定濃度の放射性核種の混合溶液を浸透させ、一定時間ごとに浸透溶液を採取し、濃度の経時変化から破過曲線を作成して、夫々の核種にフッて破過曲線から分散・拡散係数、吸着能などの評価を試みようとするものである。使用する核種は、土壌や砂を用いたバッチ試験やカラム試験で多くの場合使用されている⁶⁰Co、⁸⁵Sr、¹³⁷Csの3種とし、その混合したものである。これらの核種はいずれも塩化物の形であるが、多量の純水により希釈されるので使用した溶液はほぼ中性である。実験では核種間の反応や相互干渉、減衰による濃度低下により分散・拡散に影響は生じないものと考えた。

溶液の濃度は後に述べるようにサンプリング量が少いことと

⁸⁵Srの半減期が64日と短いことから、⁶⁰Coと¹³⁷Csは $1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 、⁸⁵Srは $2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ とした。このような溶液を用い、以下に述べる手順で実験を行った。実験は予備実験と本実験からなり、予備実験は本実験における作用圧力やサンプリング間隔の決定、漏液箇所チェックなどのため、

に行われるものである。まず、所定の形状に作成した試料の上下両端にラバーパッキンを付けたモールド内にセットし、モールド上部のナットを漏液が生じないように十分締付ける。次に、高圧窒素がスポンベ、純水タンクラインのバルブを開き試料上面に存在する空気を排除しながら純水を送り込む。この状態で74～96時間程度実験を継続し、その間、浸透流量をチェックしながら圧力調整バルブ操作により本実験の作用圧力を決定する。それと同時に浸透溶液採取管の作動状況や漏液箇所の有無チェックも行う。本実験は予備実験ラインのバルブを開め、高圧窒素がスポンベ、溶液タンクラインのバルブを開き試料上面の純水を排出させながら溶液を試料上面に送り込み、圧力調整バルブで所定の作用圧力にする。それと同時に浸透流量の測定を開始する。浸透溶液採取間隔は浸透流量により異なるが、稀田花崗岩の場合は0.5～24時間、新小松安山岩の場合は8～26時間であった。1回に採取する溶液量は試料中の溶液の流れを極力乱さないように2滴（0.08～0.12g）程度とし、その量は最小目盛0.1mgの秤量器による重量法で求めた。このようにして採取した溶液の核種濃度の測定は図-2に示す装置を用いて行った。図-2において、①は測定試料、②はゲルマニウム半導体検出器、③はゲルマニウム半導体検出器にかける高電圧電源装置とアンプ、④は波高分析装置、⑤はプリンター、⑥は鉛製ブロックである。これらの装置により1回の測定において、3核種の濃度が箇々にプリントアウトされる。採取溶液の測定に先立ち、標準溶液（溶液タンクに入っている溶液と同じもので、採取溶液量とほぼ同じ量）とバックグラウンド（純水）の測定を行った。このため、時間経過により溶液中の核種が減衰し濃度低下が生じても濃度比 $\gamma\%$ における相対的な値は変わらず、時間経過による減衰を特に考慮する必要はない。このようにして採取溶液の濃度を求めた濃度比 $\gamma\%$ も算出し破過曲線を作成した。

表 - 1 試料の物性と実験状況

試料名	密度	空隙率 (%)	吸水率 (%)	浸透流速 U (m/s)	透水係数 K (m/s)
新小松安山岩	2.43 (2.45)	15.5 (8.03)	6.78 (3.40)	4.24×10^{-6}	2.64×10^{-9}
稀田花崗岩	2.37 (2.65)	6.10 (0.810)	2.40 (0.310)	6.32×10^{-5}	2.54×10^{-7}

注 1) カッコ内は人工風化前の値
2) 浸透流速、透水係数はそれぞれ6日、229時間までの浸透流量から求めた。

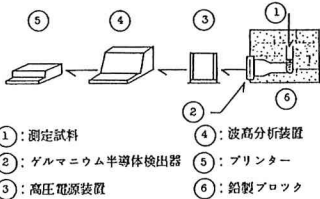


図 - 2 測定装置略図



写真-2 測定装置全景

4. 実験結果

測定は試料中に浸透流を強制的に起し浸透液採取管から溶液を採取して、濃度比 C/C_0 を求め破過曲線を作成している。結果の図-3, 4が示すように面試料の破過曲線は飽和に達してないので実験を継続している。ここで現在まで判明した事柄を述べる。

図-3は稲田花崗岩の229時間目までの破過曲線を示したもので、縦軸は濃度比 C/C_0 と浸透流量の経時変化、横軸は測定時間(時)である。実験条件は作用水圧が 0.02 kg/cm^2 、時間平均浸透流速(浸透流量/試料断面積・測定時間・空隙率)は $6.32 \times 10^{-5} \text{ m/s}$ 、平均透水係数は $2.54 \times 10^{-7} \text{ m/s}$ であり、浸透溶液採取管の位置は試料上端から 0.05 m 、 0.10 m の2箇所である。まず、上端から 0.05 m の場合を見ると検出されて来る核種の順序は ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs となりそれぞれ実験開始後1時間、3時間、60時間程で ^{85}Sr と ^{60}Co は比較的時間をおかずに検出されはじめるが、 ^{137}Cs はかなり遅れている。同じ様に試料上端から 0.10 m の場合は ^{85}Sr が3時間、 ^{60}Co が105時間程で検

出されはじめるのに対して、 ^{137}Cs は229時間現在で検出されてない。次に、各破過曲線の状態を見ると滑らかに濃度比は増加せず、増減を繰り返しながら階段状に増している。特に 0.05 m の場合が濃度比の変化は著しい傾向にあり黒く塗りつぶした 0.10 m の場合はさほどでない。このような挙動を示す要因として、浸透流速の変化、溶液と岩の化学反応による相の変化、試料温度の変化による吸着度合の変化などが考えられるが、浸透流速の変化に主として起因していると推察される。この浸透流速の変化を示す浸透流量の24時間ごとにおける値の変化を実験で示してあるが、時間の経過とともに減少しており、10日目には初日の $1/4$ 程になつてゐる。このような大きな変化がなぜ生じたのかは明らかではないが、人工風化のために加熱急冷した際に岩の内部で岩が微粉化しそれが浸透溶液に流され浸透流路を閉塞する目づまり現象が起つた可能性は考えられる。核種により検出されはじめる時間に差が見られる事と破過曲線の勾配に差が見られる事は試料(岩を構成する鉱物)の吸着能力を表現しているとも考えられるので、稲田花崗岩は ^{137}Cs を最も良く吸着し、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr の順に吸着能力が小さくなつてゐると言える。

図-4は新小松安山岩の場合で実験開始から66日目までの破過曲線と浸透流量の経時変化を示したもので、実験条件は作用水圧が 3.6 kg/cm^2 、時間平均浸透流速は $4.24 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ 、平均透水係数は $2.64 \times 10^{-9} \text{ m/s}$ である。新小松安山岩の場合の浸透溶液採取管の位置は試料上端から 0.025 m 、 0.05 m の2箇所である。核種が検出されてゐるのは上端から 0.025 m の位置のみで、 ^{60}Co は27.8日目から、 ^{85}Sr は33.4日目からで ^{137}Cs は検出されてない。破過曲線の形状は稲田花崗岩の場合と同様に、滑らかでなく階段状に増加してゐる。一才、浸透流量の変化

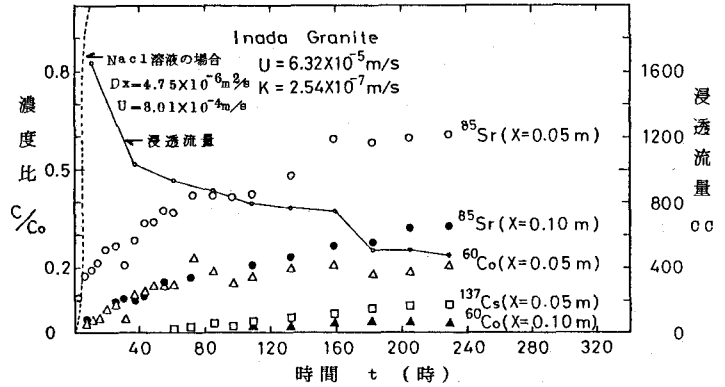


図-3 稲田花崗岩の実験結果
(実験時間229時間までの結果を示す)

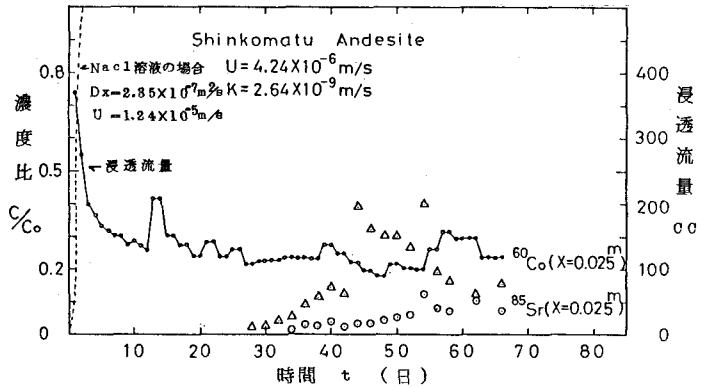


図-4 新小松安山岩の実験結果
(実験時間66日目までの結果を示す)

も榴田花崗岩と同様に実験開始直後は浸透流量が大きく、以後急に少くなり、全体的にわずかながら減りながら推移し、66日目では開始直後の1/3以下になっている。所々で浸透流量が増加しているのは実験施設に暖房が入った時である。破過曲線の勾配や検出されはじめの日時を見ると試料中に核種がどんどん吸着されていることがわかる。榴田花崗岩と新小松安山岩を対比すると、新小松安山岩の56日目と榴田花崗岩の229時間目とはほぼ浸透流量の総量は同じであるが、試料上端から0.05m、0.10mの位置にある榴田花崗岩の方が0.025m、0.05mの位置に浸透液採取管のある新小松安山岩より検出されている核種数とその濃度比は大きい。浸透流速や空隙率などが両者で異なり単純に比較できないが、新小松安山岩の方は榴田花崗岩より、吸着しやすい傾向にある事は言える。よって試料のX線回折試験によれば、榴田花崗岩には石英やカリ長石、斜長石、雲母の他に角閃石や緑泥石が認められ、新小松安山岩には石英や斜長石、雲母の他に黄鉄鉱や磷隕石が認められ、両者に含まれる鉱物の種類と量比の違いが、吸着現象に影響をおよぼしていると推定される。また、両試料において検出されはじめの核種の順序を見ると、榴田花崗岩においては ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs の順で ^{85}Sr と ^{60}Co の時間差は小さく、新小松安山岩では榴田花崗岩の逆で、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr の順になっている。これは、岩を構成する鉱物の違いや量比の差で、一様に吸着されるのではなく、ある鉱物にはある核種が吸着しやすいと言う、鉱物と核種の組合せが存在することうかがわせる。なお、図-3、4には著者らが同じ岩石によって塩水の移流拡散実験で得た分散係数、 $4.75 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (榴田花崗岩)、 $2.35 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ (新小松安山岩)を用い、今回実験の初期浸透流速から求めた理論破過曲線を点線で示した¹⁾。これらの曲線から吸着効果が放射性核種の場合にどれだけ大きいかを知ることができる。

5. まとめ

今回、榴田花崗岩と新小松安山岩の人工風化を施した試料を用い、 ^{60}Co 、 ^{85}Sr 、 ^{137}Cs の3放射性核種の混合溶液による分散の測定を試み、その状況を報告したが、それらは次のように要約される。

- 1) 放射性核種の岩への吸着は榴田花崗岩、新小松安山岩とも大きいと共に新小松安山岩において顕著であり、参考にした食塩の溶液の実験結果と対比すると、いっそう明らかである。
- 2) 榴田花崗岩と新小松安山岩において検出されはじめの核種が前者では ^{85}Sr 、後者では ^{60}Co とそれぞれ異なり、吸着しやすい核種と鉱物の組合せが存在することうかがわせた。
- 3) 実験をより迅速に行うためには、浸透液採取管の位置を可能な限り試料上端から近い所に設ける必要があることが判明した。

以上、述べたような状況であるが、可能な限り実験を継続し分散係数を算出したい。今後は人工風化を施さない試料や他の岩種での実験も試みて行きたい。

参考文献

- 1) 佐藤 邦明、佐々木康夫；岩石内浸透流における溶質分散係数の決定：応用地質，25巻，3号，1984。

(41) Experimental Study on dispersion of radioactive
isotopes solutes water in rocks

by Kuniaki Sato.,

Yasuo Sasaki

Faculty of Engineering,
Saitama University

Mitsubishi Metal
Corporation.

Abstract

When we deal with the dispersion problem of dissolved pollutant in rocks, the determination of dispersion coefficient becomes important as well as the evaluation of hydraulic parameters such as the permeability and storage coefficient.

This paper presents how to measure the dispersion of radioactive isotopes solutes: ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{137}Cs , in addition to clarify the dispersion mechanism of radio-active solute in rock seepage flow.

An inherent apparatus is newly proposed to study the dispersion and adsorption phenomena in rock seepage flow, and the utility of the apparatus proposed in this paper is confirmed. Some different properties of radio-active solute dispersion are revealed as compared with those of salt water dispersion in rocks.