

埼玉大学 工学部

正会員 佐藤 邦明

三菱金属(株) 中央研究所 ○ 正会員 佐々木 康夫

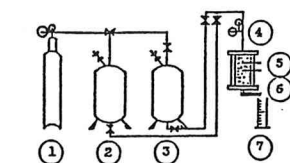
1. はじめに

放射性廃棄物の処理・処分分野において色々方法が検討されているが、中でも高レベル廃棄物を対象とした下収容の場合を考えた場合、岩盤の工学的バリアーとしての能力と汚染の問題は安全性評価の面から重要視されている。この時、しばしば浸透流を伴う物質の移行現象が関与し、流れによる岩盤中の物質の動きを把握することが必要となる。この点を踏まえ着者は浸透流を伴う場合の挙動を把握するための実験方法の確立とデータ蓄積を目的として放射性核種を用いた浸透実験を行っている。今回は等方均質と考えられる2種の岩を選び定量法で実施している状況について報告する。

2. 実験装置と試料

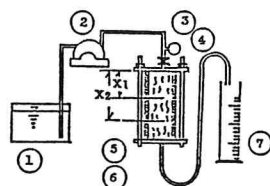
実験は図-1の概略図に示すように浸透実験と実験中に定期的に採取された溶液の濃度測定工程に大別される。浸透実験は透水試験と同様に行なわれるのが一般的であるが単純な透水試験と異なり実験に要する時間が極めて長期に及ぶため、目づまり等により時間経過とともに浸透流量の減少する場合が見られるので今回の実験では、マイクロチューブ式の微量定量ポンプを用い浸透流量が一定になるように試みた。試料は岡山県産の花崗岩と福島県産の凝灰岩(白河凝灰岩)で600℃に加熱後水中急冷されたもので、表-1に示すように浸透率は花崗岩が2.03%、凝灰岩は25.1%である。また、試料のX線回折の結果、花崗岩は石英、カリ長石、斜長石が主成分となし、他にイライトが含まれている。凝灰岩の場合は磷石膏と斜長石が主成分となし、イライトと石英、方解石が含まれており加熱処理のため粘土鉱物は認められない。使用した放射性核種は ^{60}Co 、 ^{45}Sc 、 ^{137}Cs の3種でいずれも塩化物の形で、各々 $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 、 $1.5 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 、 $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ の濃度になるように純水で希釈して浸透溶液とした。濃度測定は浸透液、希釈用純水(バックグラウンド)、採取溶液のいずれも自然乾燥後、試料自動交換機を利用した自動測定システムにより2時間づつ測定した。これらの実験では採取溶液が放射性核種を含み、非密閉状態であるので汚染防止を含めた数々の制約があり慎重に行なわなければならない。写真-1、-2に浸透実験装置と濃度測定装置の各部を示した。

(a) 定圧浸透法



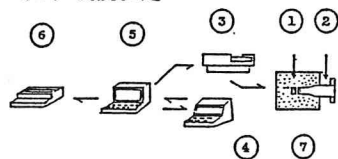
- | | |
|-----------|-----------|
| ① 高圧ガスポンプ | ⑤ モールド |
| ② 溶液タンク | ⑥ 試料 |
| ③ 純水タンク | ⑦ メスシリンダー |
| ④ 圧力調整バルブ | |

(b) 定量浸透法



- | | |
|-----------|-----------|
| ① 溶液タンク | ⑤ 浸透溶液採取管 |
| ② 定量ポンプ | ⑥ 試料 |
| ③ 圧力ゲージ | ⑦ メスシリンダー |
| ④ ストップバルブ | |

(c) 濃度測定



- | | |
|----------------|-------------|
| ① 測定試料 | ⑤ データ収集制御装置 |
| ② ゲルマニウム半導体検出器 | ⑥ プリンター |
| ③ 自動試料交換器 | ⑦ 鉛製ブロック |
| ④ 波高分析装置 | |

図-1 実験装置概略

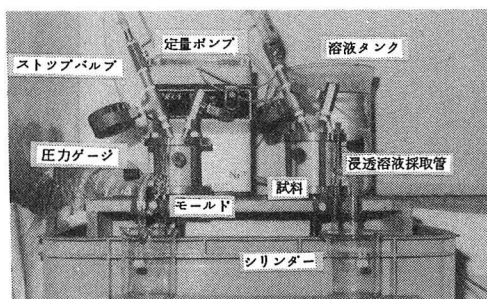


写真-1 浸透実験装置各部

3. 実験結果と検討

試料中の放射性核種の動きを定量的に把握するため、分配係

数と遅延係数および分散係数(分子拡散と移流による核種の移動現象等を含めたもの)を求めて見る。また、実験では仮定として、1) 使用した溶液の濃度範囲では吸脱着などの現象は濃度に依存しない。2) 放射性核種は相互に化学反応を起したり凝物などの新たな物質を生成しない。3) 放射性核種と岩の間では吸脱着現象のみで他の化学反応などにより新たな物質は生成しない。4) 浸透は一方方向に均一に起きる、等を考える。今回の実験では核種の試料中での移動方程式は(1)式で表わされ、核種の岩への吸脱着反応を表現する形として(2)式を考え、水に対する溶質の移行速度の遅れ程度を表す遅延係数(滞留因子とも呼ばれる)を(3)式で表わすと(1)式は(4)式のようになる。

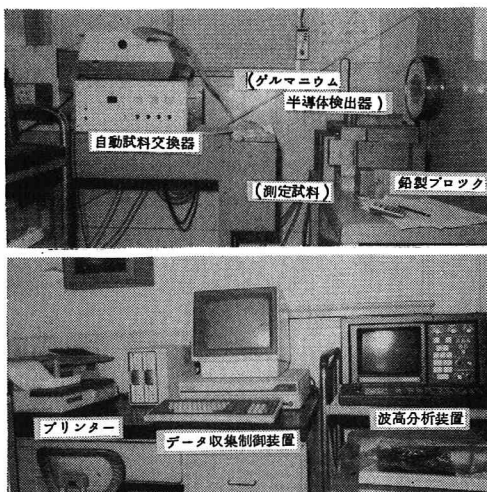


写真-2 濃度測定装置各部

$$R_f \cdot \frac{\partial C}{\partial t} = D_x \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \quad (1)$$

$$q = K_d \cdot C \quad (2)$$

$$R_f = (1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot K_d) \quad (3)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D_x}{R_f} \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{u}{R_f} \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \quad (4)$$

ここに、 q : 吸脱着量、 C : 溶液中の溶質濃度、 f : 試料生残率、 ρ : 密度、 K_d : 分配係数、 R_f : 遅延係数、 D_x : 水の浸透方向分散係数、 u : 水の平均浸透流速である。 D_x 、 u 、 R_f が実験期間中一定と考えると(4)式の D_x/R_f 、 u/R_f は一定値となり改めて D 、 U と置き換えると(1)式は吸脱着のない場合と同形になる。この式の解は

(5)式のものと(6)式になり、実験結果から R_f や D を決定するには(6)式の C_0 、 C 、 x 、 t 、 U に各々の値を与えて D を変え理論破過曲線を描き、実験から得られた結果に best fitting させる。求める。

$$\left. \begin{aligned} C(0, t) &= C_0 \quad t \geq 0 \\ C(\infty, t) &= 0 \quad t \geq 0 \\ C(x, 0) &= 0 \quad x > 0 \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x - Ut}{2(D \cdot t)^{1/2}} \right\}$$

$$+ \frac{1}{2} \exp\left(\frac{Ux}{D}\right) \cdot \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x + Ut}{2(D \cdot t)^{1/2}} \right\} \quad (6)$$

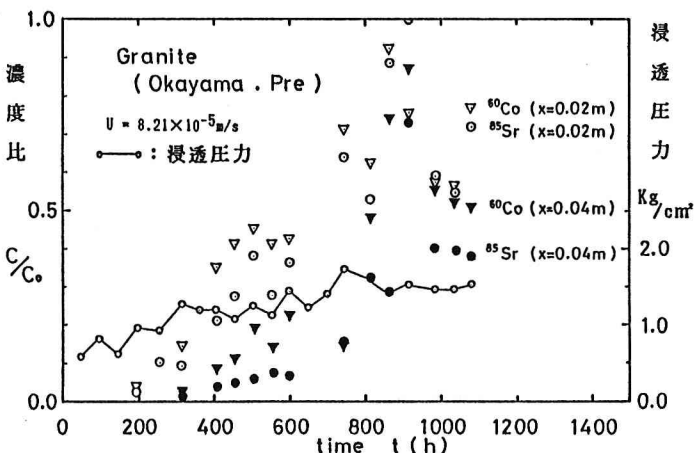


図-2 花崗岩(岡山県産)の実験結果(1080時間目まで)

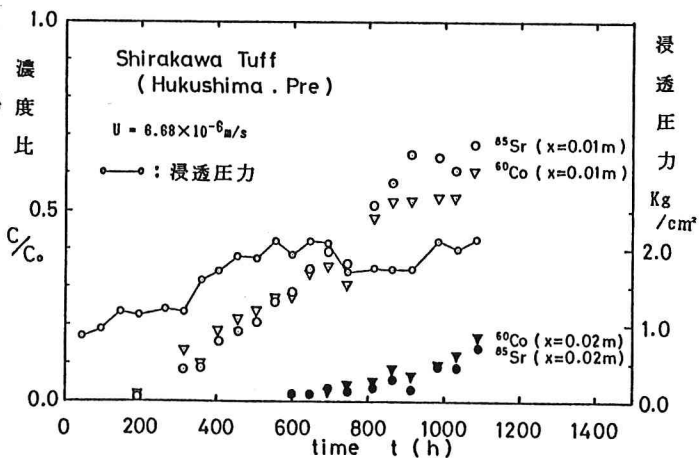


図-3 凝灰岩(福島県産)の実験結果(1080時間目まで)

図-2, 図-3に花崗岩, 凝灰岩の1080時間目までの状況と図-4には定圧法による福田花崗岩の結果を参考に示した。図-2の花崗岩では ^{60}Co , ^{85}Sr ともほぼ同時に検出されはじめ $X = 0.02\text{m}$ の場合開始約200時間, $X = 0.04\text{m}$ の場合約320時間である。 ^{137}Cs は1080時間経過後も検出されな

い。濃度比の増減は ^{60}Co , ^{85}Sr とも同じパターンを示し, 増減を繰り返しながら増加して0.5を越えるあたりから増減の割合も大きくなり, その振幅は0.5近くになってくる。図-3の凝灰岩の場合も花崗岩同様 ^{60}Co , ^{85}Sr はほぼ同時に $X = 0.01\text{m}$ では約200時間後, $X = 0.02\text{m}$ では約600時間後に検出されはじめ, ^{137}Cs は検出されな

い。検出後濃度比が0.5付近までは ^{60}Co の方が幾分大きく, それ以降は逆に ^{85}Sr の方が大きくなっていく。この現象は $X = 0.02\text{m}$ の場合では濃度比が小さいためかまた見られない。図-4の定圧法による結果と対比すると定置法の圧力変化は定圧法における浸透流量の変化に對し, 浸透圧は変化し時間経過とともに増加していく。増加の過程はかならずしも単調でなく増減を繰り返しながら増加し, 最後にポンプの上限吐出圧力に達して

いく。濃度比の増加様子は花崗岩どうしを比べると定置法の増減の振幅は小さく, 定置法のそれは極めて大きくなっていく。凝灰岩の場合は定置法でもそれ程大きくない。この濃度比の増減は試料中に生じる目づまりにより浸透流路が減少するにもかかわらず, 定置法では強制的に一定流量の溶液を浸透させようとするため浸透流路中の微小土粒子が流

れ流され, それに吸着して核種も針刺されるためと推定される。この目づまりと流れ出しの現象が周期的に起っていると考えられる。また, 凝灰岩において花崗岩程顕著でないのは生隙率が大きい事と生隙形状の違いのためではないかと思われる。

次に, 実験結果に理論曲線を best fitting させた結果について述べると, 図-5, 図-6の花崗岩, 凝灰岩の場合が示すように, X の測定結果のみに best fitting させ R_f , K_d , D を求めた。その結果図-6の凝灰岩については比較的良く合致しているが, 図-5の花崗岩の場合は濃度比の増減が著しいため合致程度は劣っている。図

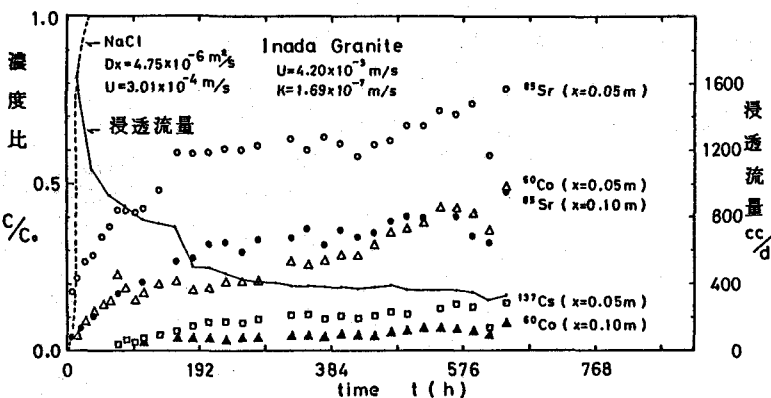


図-4 定圧法による茨城県産花崗岩の実験結果(648時間目まで)

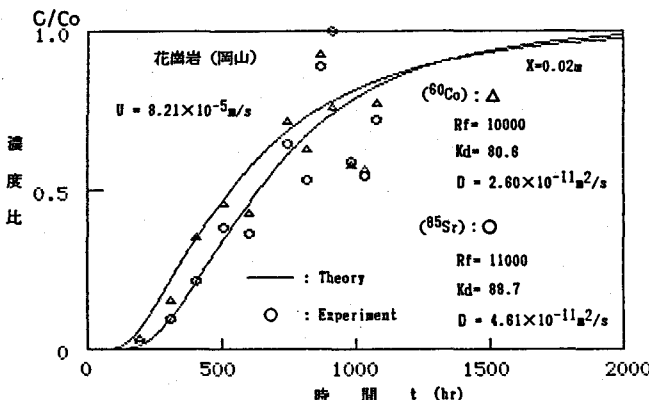


図-5 花崗岩(岡山県産)の解析結果

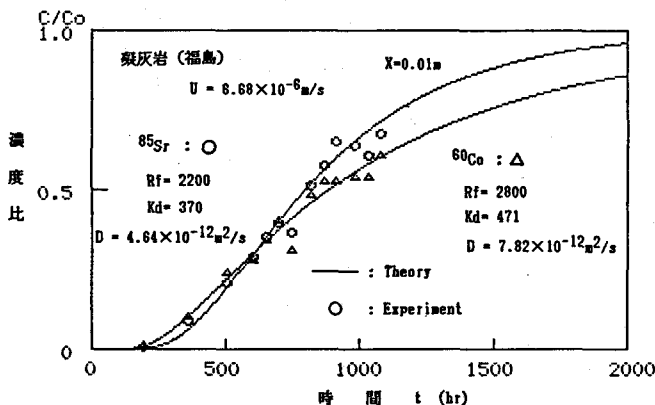


図-6 凝灰岩(福島県産)の解析結果

-5の花崗岩は平均浸透流速 u が $8.21 \times 10^{-5} \text{ m/s}$ で、 ^{60}Co の場合 R_f は 10000, K_d は 80.6, D は $2.86 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, ^{85}Sr の場合 R_f は 11000, K_d は 88.7, D は $4.61 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ が得られ、試料中の動きは ^{60}Co の方が幾分早く、 ^{85}Sr の分散係数がそれに対応して大きくなっている。図-6の凝灰岩の平均浸透流速 u が $6.68 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ で、 ^{60}Co の場合 R_f は 2800, K_d は 471, D は $7.82 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$, ^{85}Sr の場合 R_f は 2200, K_d は 370, D は $4.64 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ が得られ ^{85}Sr の方が試料中の動きは早く、それに対応して分

散係数は小さくなっている。花崗岩どうしを見ると両方とも途中までである事や試験方法の違い、測定値のバラツキなどのため簡単に比較できなかりが、定圧法の稲田花崗岩の分散係数の方が2桁程大きくなっている。

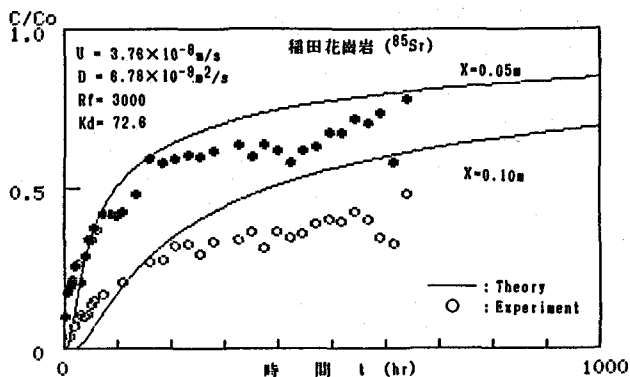


図-7 定圧法による花崗岩(茨城県産)の解析結果

表 - 1 試料岩石名と試験結果

実験方法	試料岩石名	孔隙密度 ($\times 10^{-3} \text{ kg/m}^3$)	空隙率 (%)	サンプリング位置 (m)	分配係数 K_d			分散係数 D (m^2/s)		
					^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs	^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs
定圧浸透法	花崗岩 (岡山県産)	2.59 (2.61)	2.03 (0.920)	X=0.02	80.6	88.7		2.86×10^{-11}	4.61×10^{-11}	
				X=0.04						
	凝灰岩 (白河凝灰岩)	2.24 (2.28)	25.1 (21.0)	X=0.01	471	370		7.82×10^{-12}	4.64×10^{-12}	
				X=0.02						
1) 定圧浸透法	花崗岩 (稲田花崗岩)	2.57 (2.65)	6.10 (0.810)	X=0.05	89.8	72.8	—	1×10^{-9}	6.78×10^{-9}	4.95×10^{-10}
				X=0.10	89.8	72.8	—	1×10^{-9}	6.78×10^{-9}	—
	安山岩 (新小松安山岩)	2.45 (2.45)	15.5 (8.03)	X=0.025	100	351	—	4.78×10^{-12}	1.20×10^{-11}	—
				X=0.05	—	—	—	—	—	—

使用核種	^{60}Co		^{85}Sr		^{137}Cs	
	濃度 $\mu\text{Ci/m}^2$	半減期	濃度 $\mu\text{Ci/m}^2$	半減期	濃度 $\mu\text{Ci/m}^2$	半減期
	1.0×10^{-2}	5.2 年	1.5×10^{-2}	65 日	1.0×10^{-2}	30 年

- 1) 実験結果は1080時間目までの値である。
- 2) 参考文献2による。
- 3) 密度、空隙率欄のカッコ内の値は強熱風化前の値である。

4. まとめ
放射性廃棄物の中
の・高レベル深層処分
・処理に焦点を絞り岩
における放射性核種の

動きを把握するため、適切な試験方法を確立することとデータ蓄積を目的として定圧法による浸透実験を試みている。現在(1080時間)まで認められた結果は、花崗岩、凝灰岩とも ^{60}Co , ^{85}Sr の2核種はほぼ同じ動きを示し、花崗岩では分散係数が ^{60}Co の場合 $2.86 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, ^{85}Sr の場合 $4.61 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, 凝灰岩では ^{60}Co が $7.82 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$, ^{85}Sr の場合 $4.64 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ などである。また、定圧法でそれ程顕著でなかった濃度比の時間経過に従って大きくなる現象は、試料中の浸透流路の目抜きを強制的に洗り出すことにより生じるためと推定され、特に花崗岩の場合に顕著である。このような現象は定圧法のひとつの特質と考えられ、浸透実験のむずかしさが浮彫にされた。

現在の実験を最後まで行い、定圧法における特質を把握し、今後も続けるデータ蓄積と試験方法の確立のための実験に役立てたいと考える。

参考文献

- 1) 福井正美: 飽和土壌水中における放射性核種の非線形吸着モデルに関する研究, 保健物理, 16, 1981.
- 2) 佐藤邦明, 佐々木康夫: 岩における放射性核種濃度の分散に関する実験的研究, 40周年講, 第2部P181-182.

(78) On the diffusion and absorption of radioactive
isotopes in rock seepage

by Kuniaki Sato.

Yasuo Sasaki.

Faculty of Engineering,
Saitama University

Mitsubishi Metal
Corporation

Abstract

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

This paper presents how to measure the diffusion and absorption 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 experimental apparatus for testing rock seepage by a constant discharge method 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 radioactive solute dispersion are revealed as compared with those of salt water dispersion in rocks.