

岩における放射性核種の挙動に関する研究

A study of the transfer of radioactive
nuclides in rock seepage

埼玉大学工学部 正会員 佐藤 邦明
 三菱金属中央研究所 " ○佐々木 康夫

1. はじめに

産業廃棄物の処理や処分、とりわけ放射性廃棄物の分野においては、土壌や岩盤の工学的バリアーとしての能力や汚染の問題はその安全性評価の面から特に重要視され、種々の観点からいろいろな研究が試みられている¹⁾、この場合に、しばしば浸透流を伴う物質の移行現象が関与し、流れによる土壌や岩盤中の物質挙動の把握が必要となる。この点を踏まえ、著者らは浸透流を伴う場合の挙動把握のための、実験方法の確立とデータ蓄積を目的として実際に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により実施している実験の状況について報告する。

2. 放射性核種の地層処分及び岩盤格納における移動プロセス

放射性核種の処分や処理(貯蔵・格納)について昨今いろいろな方法が検討されているが、中でも高レベル廃棄物の処理・処分において地下を対象に考えると、地下水による移動が懸念されるから基本的には廃棄物を何らかの形で固化し、核種を封じ込め、それを工学的バリアーにより保護・強化することになる。これ以一応われわれの生活圏とは隔絶されることになるはずである。しかし、何らかの原因によって工学的バリアーから外へ出た場合には生活圏への移行が起こり得ることになって人が核種と接触する可能性が生じる。通常、放射性廃棄物にはいろいろな核種があつて個々に化学的、物理的性質は違い、いうまでもなく人や動植物に与える毒性や影響は異なる。核種の移動過程は、工学バリアーの損傷・腐食などにより固化体から溶出し、それが地下水流によって拡散・輸送される過程を経て直接あるいは間接的に人間と係わって来る可能性が考えられる。この過程で地下水による移動方程式は、たとえばx方向に

$$K_i \frac{\partial C_i}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - v \frac{\partial C_i}{\partial x} + K_{i-1} \lambda_{i-1} C_{i-1} - K_i \lambda_i C_i + F(t) \delta(x), \quad (1)$$

核種の時 間変化	拡散によ る移動	地下水流 による移動	親核種からの 生成	放射壊変に よる消滅	固化体からの浸 出による地層へ の流入
	透水層における移動		崩壊項		

と書くことができる。ここに、 K_i : 滞留因子, D : 拡散係数, C_i : 濃度, v : 移流速, $F(t)$: 核種の溶出モード, $\delta(t)$: デルタ関数, λ_i : 崩壊の係数; i : 核種の種類, である。

通常の塩分散・拡散のような単純な溶質と違って核種の移動は K_i の滞留因子と崩壊がかなり支配的な影響をもち、同時に岩盤のような流れの場では移流速度 v が目づまりによって無視し難い作用を及ぼす場合もあり、それが特徴のひとつともいえる。また、水質によって滞留効果が影響を受け、式(1)の係数、パラメーターは核種によって大きく違って来るのも特色といえる。

基本的に核種の移動予測は式(1)と地下水流れの基礎式を連成させて濃度 C_i を予測することになるが、そのためには予め水理定数や式(1)の各係数を知らねばならない。しかし、いろいろな要因が関与するこれらの値をどう整理しておくかは実験の難かしさも加わって容易ではなからう。さらに、高レベル廃棄物の処理

・処分に対しては放射壊変に伴う熱による伝熱問題も加わって来ることになる。岩盤のように割れ目系を含む場合には核種の移動は割れ目系と岩石部分で同時に生じることになるので二重構造の拡散場を考える必要が生じるため岩石の透水性はもとより割れ目系の空間構造を知ること大切となる。

3. 実験装置と実験方法

実験は放射性核種溶液による浸透実験と浸透実験中に定期的に採取された溶液の濃度測定との2工程に大別される。図-1にはそれらの概略を示してあり、以下、図に従いそれらの概要を述べる。

一般に浸透実験は浸透溶液に作用させる圧力を一定に保つ、いわゆる定圧法で行なわれるのが通例である。しかし、今回のように砂や土壌に比べ緻密な岩を用い、しかも長期間に渡り実験を継続して行う場合には、目づまり等のため時間経過とともに浸透流量の減少する場合が見られ、浸透流量が $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{4}$ 程度になった例もある²⁾。このため、今回の浸透実験では微量定量ポンプを使い実験期間中、浸透流量(浸透流速)が一定になるようにした。

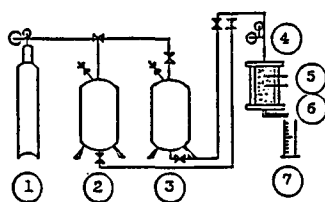
実験に供された岩は岡山県

産の花崗岩と福島県産の凝灰岩(通称、白河凝灰岩)の2種で、いずれも600℃に加熱後水中急冷されたものである。試料は直径30mm、長さ60mmの円柱形で、その周囲は10mmの厚さに樹脂によりコーティングされている。内径0.3mmの浸透溶液採取管は花崗岩の場合、試料上面から0.02m(図-1では x_1)と0.04m(x_2)、凝灰岩の場合は0.01m、0.02mにそれぞれ設けてある。微量定量ポンプは最大吐出圧力が 1.5 kg/cm^2 のチューブ式で吐出量は任意に選定できるが、今回は1日当り115mlに設定した。浸透溶液採取量は1回につき2滴(0.1g前後)とし、その定量は感量0.1mgの直示天秤で行い、自然乾燥させた後濃度測定試料とした。

次に、濃度測定工程では従来、手動によりその都度測定試料を交換しデータ処理して結果を求めていたのを、今回は試料自動交換機を導入し、かつデータ収集・処理を含め一括してマイクロコンピュータで制御させる自動測定方式に変え濃度測定を行った。濃度測定では、採取試料のほか、原溶液とバックグラウンド補正用の純水もその都度測定した。このため、時間経過に伴う原溶液中の核種の放射壊変による濃度減少は考慮しなくても良いことになる。試料の計測時間は1試料2時間(7200秒)とした。

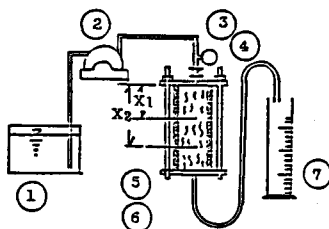
使用した放射性核種は ^{60}Co 、 ^{85}Sr 、 ^{137}Cs の3種でいずれも塩化物の形のものであり、これを $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 、 $1.5 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ 、 $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ の濃度になるように純水で希釈して浸透溶液とした。このようにして、浸透実験と浸透溶液の濃度測定を行うが、取扱う溶液が放射性核種を含み、非密閉状態で使用するので、実験場所、方法には、汚染防止を含めた数々の制約があり、実験は慎重の上にも慎重を重ね

(a) 定圧浸透法



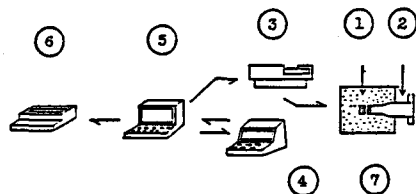
- | | |
|-----------|-----------|
| ① 高圧ガスポンプ | ⑤ モールド |
| ② 溶液タンク | ⑥ 試料 |
| ③ 純水タンク | ⑦ メスシリンダー |
| ④ 圧力調整バルブ | |

(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 鉛製ボックス |
| ④ 波高分析装置 | |

図-1 実験装置概略

行なわなければならない。このため多分に、状況の変化に応じた臨機応変な対応が出来ない場合も生じ、後述するように目づまりによる浸透流量の減少なども生じた。

表－１には、実験結果とともに使用した試料の物性値や放射性核種の特性などをまとめて示した。また、写真－１、写真－２には浸透実験装置と濃度測定装置の各部を示した。

4. 実験結果と検討

岩試料における放射性核種の動きを定量的に把握するため、ここでは、分配係数と分散係数（分子拡散や移流による分散現象等を含めたもの）を求める。今回の実験では仮定として、1)、使用した溶液の濃度範囲では吸着などの現象において、濃度に依存しない。2)、使用した放射性核種は相互に化学反応を起し、澱物などの新たな物質を生成しない。3)、放射性核種と岩との間では吸脱着現象のみで、両者の化学的反応などにより新たな物質は生成しない。4)、浸透は一方向に均一に起きている、等を考えている。

今、実験では、式（１）に示した核種の移動方程式において、放射壊変により生じる娘核種、壊変による濃度減少及び、固化体からの浸出の３つの項を無視し得うと考えると、試料中の放射性核種の移動方程式は

$$K_i \frac{\partial C_i}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - v \frac{\partial C_i}{\partial x} \quad (1)'$$

となる。放射性核種の岩への吸脱着反応を表わす形として

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

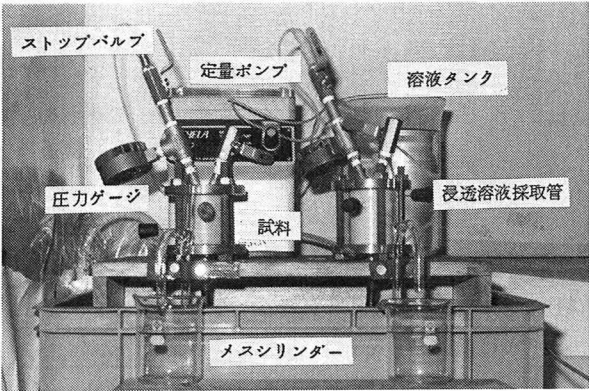
を考え、かつ、水に対する溶質の移行速度の遅れ程度を表わす滞留因子 K_i （遅延係数 R_f と呼ばれている）は

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

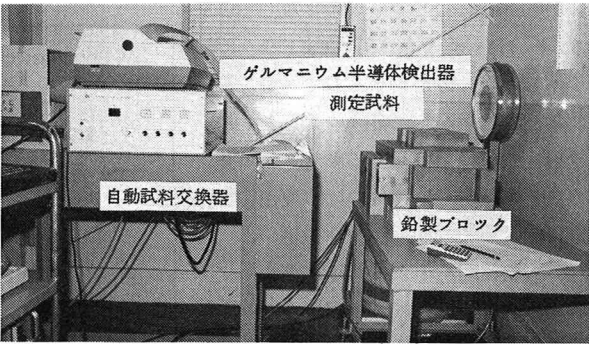
と書けるので核種の移動方程式は

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{Dx}{K_i} \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{v}{K_i} \cdot \frac{\partial C}{\partial x} \quad (4)$$

となる。ここに、 δ ：吸脱着量、 C ：溶液中の溶質濃度、 f ：試料の空隙率、 ρ ：試料の真の密度、 K_d ：分配係数、 K_i ：滞留因子、 Dx ：水の浸透方向分散係数、 v ：水の平均浸透流速である。実験において、



写真－１ 浸透実験装置各部



写真－２ 濃度測定装置各部

Dx , v , Ki は期間中一定値をとると考えると、(4)式における Dx/Ki , v/Ki は一定値となり、それを改めて D , V で表わすと(1)式の滞留因子のない場合と同形の式になる。この式の解は(6)式のもので

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \frac{x-Vt}{2(D \cdot t)^{\frac{1}{2}}} + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{Vx}{D}\right) \cdot \operatorname{erfc} \frac{x+Vt}{2(D \cdot t)^{\frac{1}{2}}} \quad (5)$$

$$C(0, t) = 0 \quad t \geq 0,$$

$$C(\infty, t) = 0 \quad t \geq 0,$$

$$C(x, 0) = 0 \quad x > 0,$$

(6)

となる。実験結果から実際に分配係数 Kd や浸透方向分散係数 D を決定するには、(5)式の C, C_0, x, t, V にそれぞれの値を与え D を求め理論破過曲線を描き、実験から得られた測定結果と比較し

best fitting させる。best fit した時の値が求める D である。前年度の結果から、実験に用いた放射性核種は想像以上に吸着されることが判明しているため、使用量に制限のある放射性核種を用い、かつ実験期間を出来るだけ短縮するため、今回は、試料断面積と浸透溶液採取管の試料上面からの位置を可能な限り小さくした。しかし、図-2、図-3の結果が示すように花崗岩、凝灰岩とも実験開始後36日経過した時点でも濃度比 C/C_0 は上端に近い位置で花崗岩が0.89、凝灰岩が0.57に達しただけである。このため、結果の図・表に示した分配係数や分散係数は36日(864時間)目までの値を用い求めた結果である。従って、今後実験を継続して行くことにより、それらの値は幾分変わって来

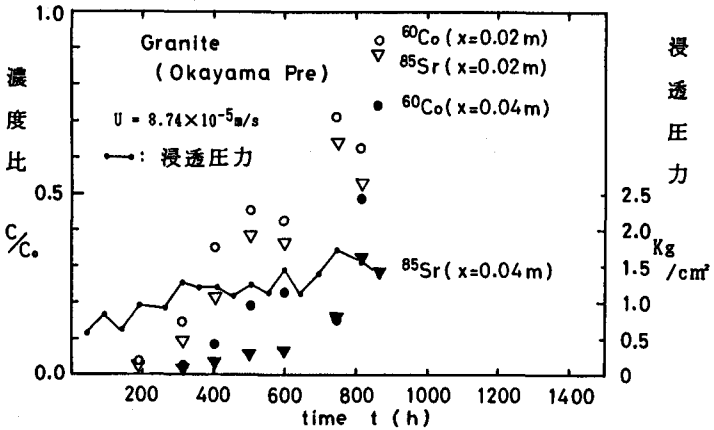


図-2 花崗岩(岡山県産)の実験結果(864時間目まで)

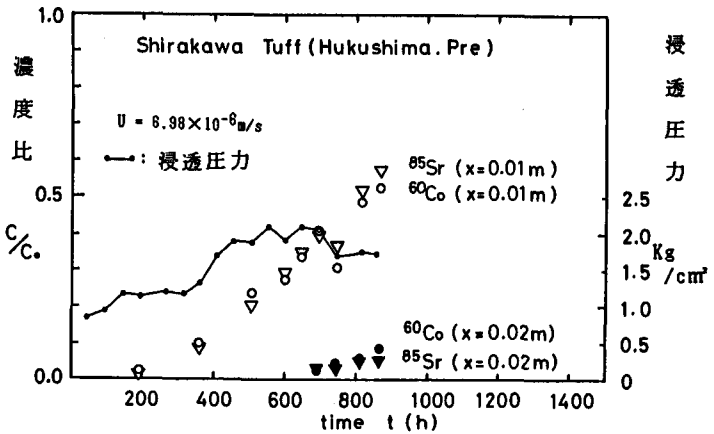


図-3 凝灰岩(福島県産)の実験結果(864時間目まで)

始後36日経過した時点でも濃度比 C/C_0 は上端に近い位置で花崗岩が0.89、凝灰岩が0.57に達しただけである。このため、結果の図・表に示した分配係数や分散係数は36日(864時間)目までの値を用い求めた結果である。従って、今後実験を継続して行くことにより、それらの値は幾分変わって来

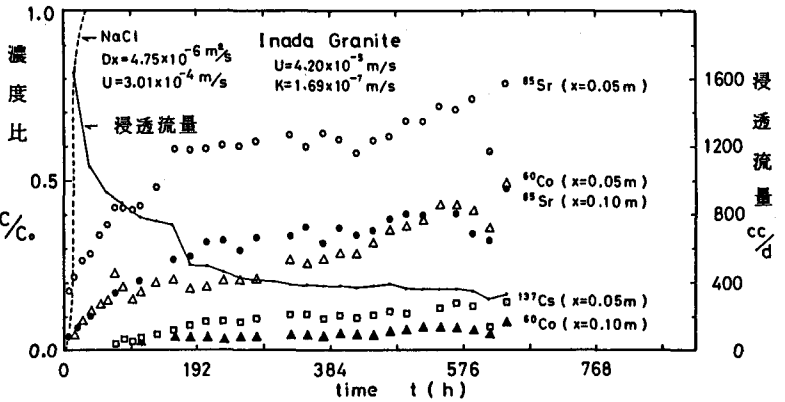


図-4 定圧法による茨城県産花崗岩の実験結果(648時間目まで)

ることが予想されるので、ここではあくまでも中間的な値として報告する。図-4には参考として定圧法で行った稲田花崗岩の実験結果を示した。

図-2の花崗岩（岡山県産）の場合⁶⁰Co, ⁸⁵Srとも $x_1=0.02$ mでは約200時間、 $x_2=0.04$ mでは約320時間で検出されはじめ、その後、濃度の増減を繰り返しながら濃度比は1.0に近づきつつある。0.02 m, 0.04 mとも濃度比は⁶⁰Coの方が⁸⁵Srより幾分大きくその差は時間経過に従い大きくなる傾向を示している。一方、¹³⁷Csは864時間目でも検出されておらず⁶⁰Coや⁸⁵Srに比べ格段に吸着されている。864時間までの平均浸透流速 v は 8.62×10^{-5} m/sである。図-3の凝灰岩の場合は花崗岩に比べ1桁小さい 6.88×10^{-6} m/sであるが、 $x_1=0.01$ mの場合花崗岩と同じ200時間前後で⁶⁰Co, ⁸⁵Srとも検出されている。しかし、濃度比の増加は花崗岩に比べ幾分小さく0.5を越えたところである。 $x_2=0.02$ mの検出時間は約700時間経過後で x_1 に比べかなり遅れ、濃度比の増加もゆっくりしている。¹³⁷Csは花崗岩の場合と同様に検出されていない。図-4の定圧法による結果と対比すると、定量法では定圧法における浸透流量の変化に対応し、圧力が変化し時間経過とともに増加している。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定量ポンプの上限吐出圧力に達している。特に花崗岩で顕著に見られる濃度比の増減は試料中において、目づまりとそれの洗い出しが交互に生じているためと考えられ、定圧法では余り顕著に見られない現象である。次に、実験結果に理論曲線をbest fittingさせた結果について花崗岩の場合を図-5に、凝灰岩の場合を図-6に示し、図-7には定圧法による稲田花崗岩の結果を示した。図-5, 6とも x_1 の値についてのみ計算を

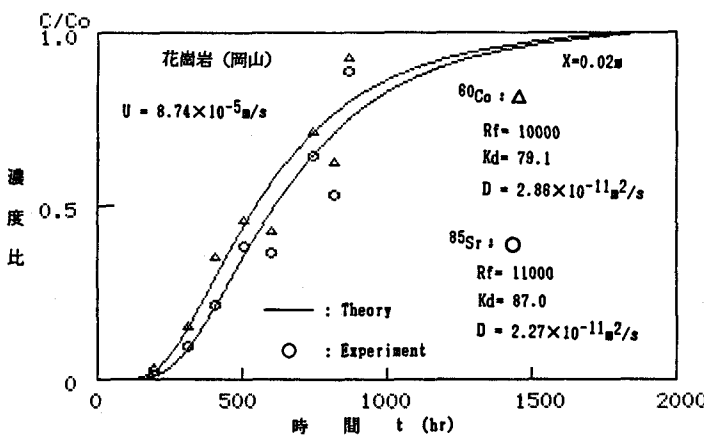


図-5 花崗岩（岡山県産）の解析結果

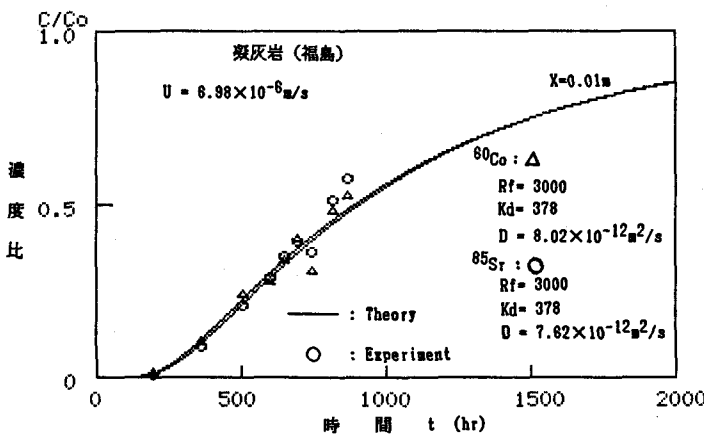


図-6 凝灰岩（福島県産）の解析結果

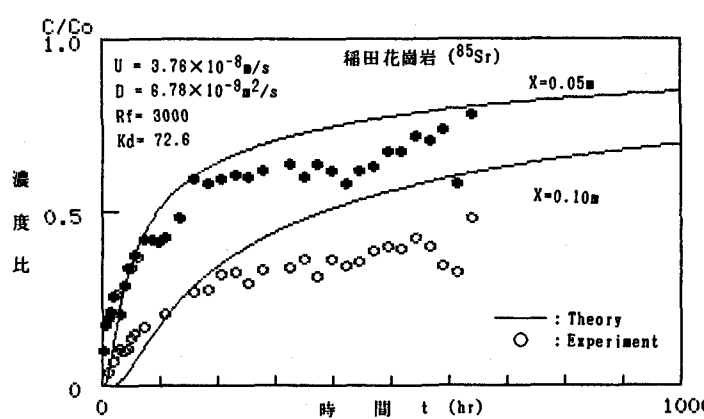


図-7 定圧法による花崗岩（茨城県産）の解析結果

行い遅延係数 Rf , 分配係数 Kd , 分散係数 D を求めた。その結果、図-5, 6とも濃度比が1.0に達しない途中までの測定値に best fit させたものであるが、実験値と理論値は比較的良く合っていると見ることができる。図-5の花崗岩については⁶⁰Coの場合 Rf は10000, Kd は79.1, D は $2.86 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, ⁸⁵Sr の場合 Rf は11000, Kd は87.0, D は $2.27 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ が得られ、⁶⁰Coの方の分散係数が幾分大きくなっている。図-6の凝灰岩については⁶⁰Coの場合 Rf は3000, Kd は378, D は $7.62 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$, ⁸⁵Sr の場合 Rf は3000, Kd は378, D は $8.02 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ で Rf や Kd は両核種同じであるが、分散係数 D のみがほんの一寸だけ⁸⁵Srの方が大きくなっている。図-7の稲田花崗岩と図-5の花崗岩を比較すると浸透流速の違いもあるが、稲田花崗岩の分散係数の方が2桁程大きく同じ岩種でも広い範囲の値を示す可能性がある(浸透実験の違いに起因している可能性も考えられる)。

表-1 試料と放射性核種及び実験結果

実験方法	試料 岩石名	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 Kd			分散係数 D (m^2/s)		
					⁶⁰ Co	⁸⁵ Sr	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	⁸⁵ Sr	¹³⁷ Cs
定置浸透法	花崗岩	2.50	2.03	X=0.02	79.1	87.0	—	2.86×10^{-11}	2.27×10^{-11}	—
	(鳴山凝灰)	(2.01)	(0.020)	X=0.04						
	凝灰岩	2.24	25.1	X=0.01	378	378	—	8.02×10^{-12}	7.62×10^{-12}	
	(白川凝灰岩)	(2.20)	(21.0)	X=0.02						
定圧浸透法	花崗岩	2.57	0.10	X=0.05	80.0	72.0	—	1×10^{-8}	0.70×10^{-8}	0.05×10^{-10}
	(稲田花崗岩)	(2.05)	(0.010)	X=0.10	80.0	72.0	—	1×10^{-8}	0.70×10^{-8}	—
	安山岩	2.45	15.5	X=0.025	100	351	—	4.70×10^{-12}	1.20×10^{-11}	—
	(新小松安山岩)	(2.45)	(0.03)	X=0.05	—	—	—	—	—	—

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

- 1) 参考文献2による。
- 2) 密度、空隙率欄のカッコ内の値は強熱風化前の値である。

5. ま と め

産業廃棄物の中で特に放射性廃棄物に焦点を絞る岩における放射性核種の挙動を把握するため、適切な実験方法を確立することと、データ蓄積を目的として、定量法による浸透実験を試みている。現在まで得られた結果では花崗岩、凝灰岩とも⁶⁰Co, ⁸⁵Sr の2核種はほぼ同じ挙動を示し、概略、花崗岩では遅延係数 Rf 10000, 分配係数 Kd は80, 分散係数 D は $2.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, 凝灰岩では Rf は3000, Kd は380, D は $8 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ である。¹³⁷Cs は両試料とも864時間経過しても検出されず、核種により吸着されやすさに非常な違いがあることも示している。また、定圧法ではそれ程顕著でなかった濃度比の変化が定量法では時間経過とともに顕著になり、目づまりと洗い出しが交互に生じ、それに伴って濃度比も変化すると考えられ現象が見られ、岩における浸透実験のむずかしさが示された。現在の実験を最後まで続け、定量法の得失を把握するとともに、数々の制約のもとで行なわなければならない放射性核種を用いた浸透実験方法の確立とデータ蓄積のため今後も実験を続けて行く。

参 考 文 献

- 1) 増田純男他：高レベル廃棄物地層処分における固化体，工学バリア，地層の役割，原子力工業，第27巻，第9号，1980，pp37～42
- 2) 佐藤邦明，佐々木康夫：岩における放射性核種溶液の分散に関する実験的研究，土木学会第40回年次講演会概要集，第2部，1985，pp181～182
- 3) 慶伊富良：吸着，共立全書 1965
- 4) 西牧研社：放射性核種の地中での挙動に関する調査研究，京都大学原子炉実験所，1978
- 5) 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