

低レベル放射性廃棄物の浅層処分における溶質移行に関する基礎研究  
Fundamental study on migration of nuclides in underground disposal  
of low-level radioactive waste

|          |       |                   |
|----------|-------|-------------------|
| 埼玉大学 工学部 | 佐藤 邦明 | Kuniaki SATO      |
| “ ”      | 宗像 雅広 | Masahiro MUNAKATA |
| 日本原子力研究所 | 松鶴 秀夫 | Hideo MATSUZURU   |
| (株)熊谷組   | 伊藤 洋  | Yo ITO            |
| 大成建設(株)  | 今村 聡  | Satoshi IMAMURA   |

In order to clarify the mechanism of solute migration in an unsaturated zone of soil stratum, the basic experiments on the upward and downward movements of water and solutes (NaCl, Sr, Co, Cs) under the artificial environment (rainfall-evaporation cycles) were carried out. The experimental apparatus used in this study consists of a large soil box, nozzles of rain-fall, infrared lamps, thermometer sensors, recorders and sampling tubes. The vertical profiles of solute concentration, temperature and water content in the unsaturated zone above the groundwater are measured for different groundwater depth. The analytical solutions of governing equations at the steady-state are derived. The comparison between solutions and experimental results shows a good agreement. The results describe that the solute migration depends upon not only vertical movement of moisture but also a depth of capillary fringe.

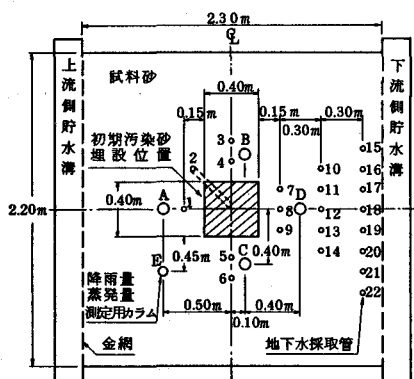
Keywords : groundwater, solute migration, evaporation, moisture movement

## 1. 序 論

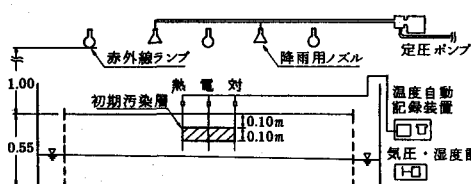
今後の原子力発電を支える核燃料サイクルを確立するに当って、放射性廃棄物処分の問題は残された最重要課題となっている。世界的に見て、陸地・地層処分が最も有望視されている。その安全性評価において、処分施設周辺の地下水の挙動、それに伴う放射性核種の移動・拡散現象、ならびに放射性核種と地層との相互作用を解明した上で、適切な評価モデルを開発し、評価に必要なデータベースを実験的に収集整備することが不可欠であろう。有害物質を含んだ排水や農薬・肥料による地下水汚染・土壌汚染や、その溶質移行についてはいくつかの分野で研究成果が蓄積されつつある。しかし、近年蒸発によって不飽和層中を鉛直上方に移動する現象が著者により報告されており<sup>1)</sup>、不飽和層中における溶質移動が重要視されてきた。また、降雨と蒸発の繰り返しによる溶質の鉛直移動についてはその研究成果も少なく、井上ら<sup>2)</sup>によるものが注目される。この様な背景より本論では人工気象装置を備えた大型土層を用いて室内実験を行い、環境条件が周期的に変動する場合における不飽和地盤中の溶質移行現象を解明しようとしたものである。特に、降雨量に対し蒸発量が大い場合を環境条件として与え、地下水面の位置を変えて数ケースの実験を試みた。さらに、提案した基礎式の定常解を求め、実験値との比較・検討も加えた。

## 2. 実験装置及び実験方法

実験装置は図-1に示すように大型土槽、人工気象装置、測定器機より構成される。大型土槽は縦2.2 m、横2.3 m、深さ0.55 mの大きさで両側に貯水溝部を持ち、人工地盤とは金網付多孔板で区切られている。貯水溝内にあるオーバーフロー装置により水位はそれぞれ任意に設定でき、動水勾配  $i$  を与えることにより地下水に移流を与えることができる。動水勾配は全ての実験で一定とし  $i = 1/230$  を与えた。人工気象装置は人



(a) 平面図



(b) 側面図

図-1 実験装置の概要

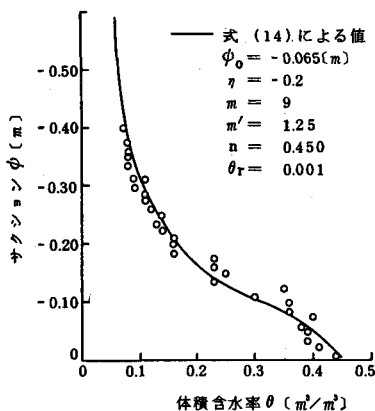


図-2 水分特性曲線

表-1 実験条件と使用したトレーサ

|       | 地下水面位置  | 環境条件                        |                       | トレーサ                  | 期間          |
|-------|---------|-----------------------------|-----------------------|-----------------------|-------------|
|       |         | 平均降雨量                       | 平均蒸発量                 |                       |             |
| Case1 | -0.4 m  | 降雨1時間の後<br>8.6mm/h          | 3.2mm/day             | C1 <sup>-</sup>       | 9/10~10/7   |
| Case2 | -0.3 m  | 日照を3日間<br>11.1mm/h          | 8.0mm/day             | C1 <sup>-</sup>       | 10/17~11/13 |
| Case3 | -0.25 m | 連続、これを<br>1サイクルとし<br>計9サイクル | 11.3mm/h<br>9.9mm/day | Sr,<br>Co, の3種<br>Cs, | 11/29~12/28 |

工地板上部の降雨シミュレーター（定圧ポンプ及び噴霧用ノズル）と赤外線ランプ（375 W, 13個）より構成され、両者とも地盤表面に均一に人工降雨及び人工日射を与えることができる。また、実験には水道水（塩素濃度0.01%）を使用し、試料砂は川砂を洗浄して粘土・シルト分を取り除いたものであり、その物理的特性は、中央粒径  $D_{50} = 0.35\text{mm}$ 、均等係数  $U_c = 2.47$ 、乾燥密度  $\rho_d = 1.45 [\text{t/m}^3]$ 、比重  $G_s = 2.75$ 、間隙率  $n = 0.450$ 、飽和透水係数  $k_{sat} = 2.5 \times 10^{-4} [\text{m/sec}]$  であった。試料砂の水分特性曲線については排水過程において図-2の様な結果が得られた。

実験は人工地盤中央部（図-1中斜線部分）の地表面下0.1 m～0.2 mの位置に所定のトレーサ濃度を持つ初期汚染砂を縦0.4 m、横0.4 m、高さ0.1 mの直方体状に埋設し、これを初期汚染層とした。この時初期汚染層の含水率を埋め込み予定位置の含水率と同じになる様に調節した。その後この汚染層中の溶質が降雨と蒸発によって不飽和層中をどの様に移行するのかを、地下水面の深さを変えて実験した。今回は、特に降雨量に比べ蒸発量が非常に大きい場合を環境条件として与え、近年問題視されている溶質の鉛直上方移動が長期間周期的に変動する環境条件下でどう変化するのかに力点を置いた。表-1は実験条件を示したものである。環境条件は、降雨1時間の後、日照を71時間与え、合計72時間（3日間）を1サイクルとしてこれを9サイクル（27日間）行った。この時赤外線ランプによる人工日照条件は全Case同一とした。地下水面位置については試料砂の毛管上昇高さ（約20cm）を考慮して、初期汚染層が毛管帯

上部にある場合（Case1）、毛管帯内にある場合（Case2, Case3）とに大別して行った。

測定項目は、気温、地中内温度、気圧、湿度、降雨量、蒸発量、地層中の体積含水率及び溶質濃度であった。温度については熱電対と温度自動記録装置により、また気圧と湿度は気圧湿度計によった。降雨量・蒸発量は人工地盤中に設置した塩化ビニール製円柱カラム（図-1(a)中のA～Eの5ヶ所、直径0.12m、長さ0.55m）の重量分析により求めた。体積含水率と溶質濃度については試料を50g程度サンプリングし、炉乾法によって含水率を求め、その後NaCl濃度は導電率計（精度1/1000%）を用いた測定により、Coに対しては原子吸光法、他のSr, Csについては蛍光光度法で測定した。サンプリングは初期、3サイクル後、6サイクル後、9サイクル後の3サイクルごとに行い、溶質移行に関する経時的な変化を測定した。さらに詳細な濃度分布の経時変化は、Case2の9サイクルの実験終了後に、降雨を1時間与え、その後日照を24時間与えて測定した。また、地下水流中の水質は、図-1(a)中の地下水採取管（番号1～22）によって調べた。

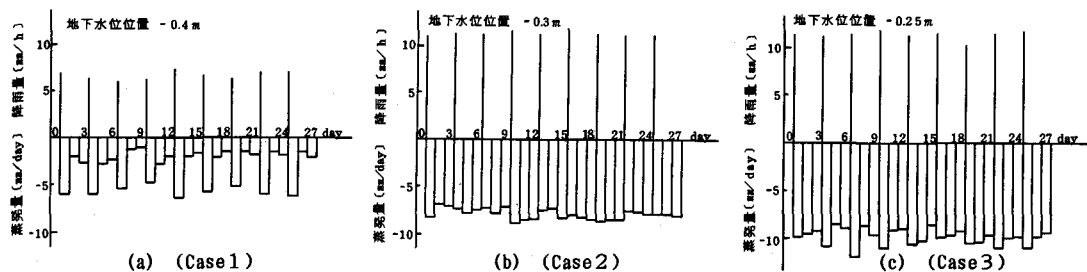


図-3 実験中の降雨量と蒸発量の経時変化

### 3. 実験結果

実験結果は、蒸発量と降雨量の経時変化、鉛直方向の温度分布、含水率分布、濃度分布等が得られ、その結果について順を追って説明する。図-3は実験中に与えた降雨量[mm/hr]を縦軸 $\oplus$ 方向に、測定された蒸発量[mm/day]を $\ominus$ 方向に示した図である。これらによれば地下水位の高いCase2, 3の場合、与えられた日射条件の下で蒸発量は経時的にほぼ一定の値を示している。これは地下水位が高く毛管水帯が表層にあり、含水率が高いため蒸発が間断なく継続した結果である。それに対し地下水位の低い場合(Case1)には、降雨サイクル内において降雨後1日の蒸発量がほぼ降雨量と同程度の大きな値を示し、他の日はわずかな蒸発量となる。これは地下水位が低い事によって表面付近の低含水率領域中を降雨が浸潤するため一時的に表面付近の含水率が増加し、降雨直後から日照によりほぼ降雨量に相当する量が蒸発した後、表面付近が乾燥し下方から上方への水分供給がわずかになり蒸発が抑制されていることによる。

図-4は初期汚染層中央部における地層内温度の鉛直方向分布を示したもので9サイクル終了時点における値である。地層内温度も降雨浸透により一時的に冷却され低下するが、降雨後5~10時間程度で図-4の様な定常状態にもどる。Case1の場合は表面付近が乾燥しているため他のCaseに比べ地層内温度が高い。

図-5は図-4と同様に9サイクル終了時点の体積含水率の鉛直方向分布を示したものである。3つのCaseとも同様な分布を示しているもののCase1の表面付近での値は他のそれと比べて小さく、乾燥層が表面下0.06~0.07mにまで及んでいるのが分かる。

この結果と図-2から判断して体積含水率が0.1前後で水分の連続性に関する性質が変化していると考えられる。

次に図-6は各Case別に溶質濃度の鉛直方向分布を3サイクルごとに測定して得られた結果である。(a)はCase1についての非吸着性トレーサー( $\text{Cl}^-$ )の結果であり、降雨によって下方へ流されずに残留した溶質分が上方へ移動しているのが分かる。これは6サイクル後に深さ7.5 cmに見られるピークが9サイクル後には深さ2.5 cmの所に現われている事でも裏付けできる。著者らは地下水面位置が深く蒸発のみが長期的に継続した場合においては、地下水中の溶質が毛管帯上縁から地表付近に蓄積し濃縮される報告<sup>1)</sup>をしたが、今回もそれと類似した結果といえる。ただし、Case1の場合表面付近においても高濃度の結果が得られたが、これは、降雨直後からの蒸発においては表面付近においても液状水による移動が可能となり、再び乾燥する

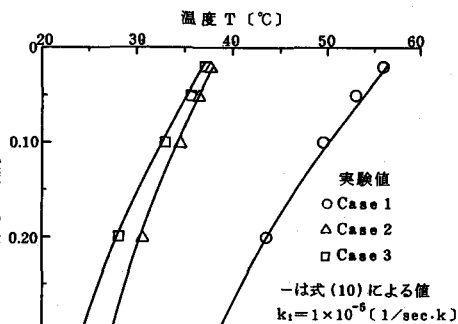


図-4 実験終了時の鉛直方向温度分布

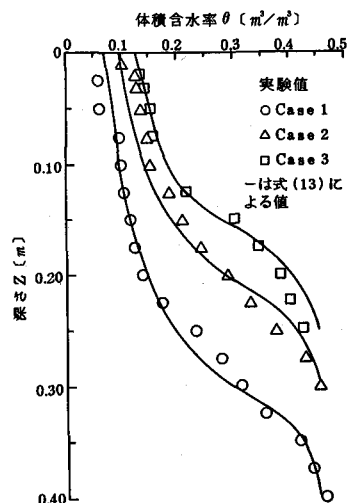


図-5 実験終了時の含水率の鉛直分布

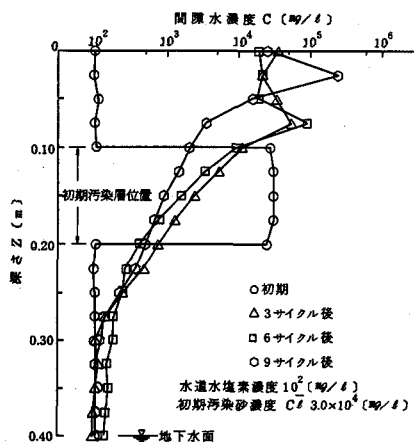


図-6 (a) 塩素濃度の鉛直分布 (Case1)

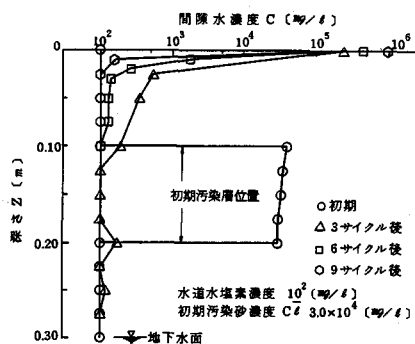


図-6 (b) 塩素濃度の鉛直分布 (Case2)

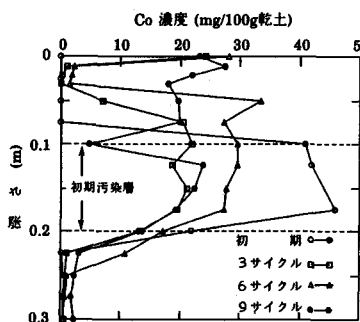


図-6 (c) コバルト濃度の鉛直分布

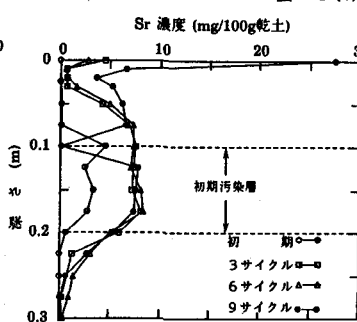


図-6 (d) ストロンチウム濃度の鉛直分布

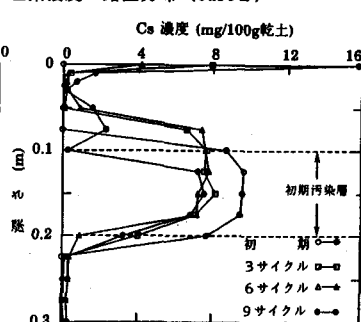


図-6 (e) セシウム濃度の鉛直分布

までの間に液状水中の溶質が上部に運ばれたものと考えられる。その液状水による移動がより活発に行われたCaseが図-6 (b) のCase2, (c) ~ (e) のCase3の場合である。Case2では3サイクル後で既に飽和濃度 (NaClで27%) に近い値となっている。これは、液状水による溶質移動がより活発に行われた結果である。Case3のSr, Co, Csの場合はそれぞれ初期及び9サイクル後について示してある。Case1より地下水位が高く、Case2と同程度の活発な蒸発が行われているにもかかわらず、初期汚染層位置の濃度はあまり低下していない。しかし、最終段階ではこの場合においても表面付近での溶質の濃縮がおこっている。このことは、放射性核種の上方移動は間隙水の移動に比してかなりの遅延効果が期待されることを示している。

ところで、以上の実験以外に降雨直後から24時間後まで数時間ごとにサンプリングして、表面に蓄積した溶質が降雨・蒸発によってどの程度移行するか実験を行った。濃度分布の経時変化に関する結果について図-7に示した。これはCase2の9サイクル終了後に降雨10.9 [mm/hr] を1時間与えた後、日照を24時間与えた間の結果である。これによれば降雨直後には表面から不飽和層内部へ輸送された溶質が蒸発による液状水の上方移動の結果再び地表面に移動していく様子がうかがえる。さらに日照条件が続く様ならば降雨前の状態にもどり、表面における濃度の上昇をうながす事が予想される。

#### 4. 支配方程式と定常解

実験結果でも述べた様に不飽和層中での溶質移動には液状水フラックス密度  $q_L$  が重要な役割を果たす。Philip & De Vries<sup>3)</sup>によれば温度勾配下における不飽和多孔媒体中の水分移動は液相と気相とで行なわれるとして、移動則を与え、質量保存則を定式化して基礎式を得ている。鉛直一次元で表現すると、

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( D_T \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_\theta \frac{\partial \theta}{\partial z} \right) + \frac{\partial k}{\partial z}, \quad (1)$$

$$\left. \begin{aligned} D_{Tv} &= \frac{Datm}{\rho_l} \nu \alpha (n-\theta) h \frac{d\rho_o}{dT}, & D_{Tl} &= k \gamma \phi \\ D_{\theta v} &= \frac{Datm}{\rho_l} \nu \alpha (n-\theta) \frac{\rho_o g h}{RT} \frac{d\phi}{d\theta}, & D_{\theta l} &= k \frac{d\phi}{d\theta} \end{aligned} \right\} (2),$$

$$\left. \begin{aligned} D_T &= D_{Tv} + D_{Tl} \} & h &= \exp(g\phi/RT) \\ D_\theta &= D_{\theta v} + D_{\theta l} \} (3) & \rho_o &= 10^{-3} \exp(19.819 - 4975.9/T) \\ \theta &= \theta_v + \theta_l \} & Datm &= 5.83 \times 10^{-11} T^{2.3} \end{aligned} \right\} (4)$$

となり、ここに  $\theta$  ; 体積含水率 [ $m^3/m^3$ ],  $T$  ; 温度 [K],  $D_T$  ; 熱的水分拡散係数 [ $m^2/sK$ ],  $D_\theta$  ; 等温水分拡散係数 [ $m^2/s$ ],  $k$  ; 不飽和透水係数 [ $m/s$ ],  $Datm$  ; 水蒸気の空气中での分子拡散係数 [ $m^2/s$ ],  $\rho_o$  ; 飽和水蒸気密度 [ $kg/m^3$ ],  $h$  ; 相対湿度,  $\nu$  ; mass flow factor (=1.01),  $\alpha$  ; 屈曲度 (=0.67),  $n$  ; 間隙率 [ $m^3/m^3$ ],  $R$  ; 水蒸気の気体定数 (461.37 J/kgK),  $g$  ; 重力加速度 (9.81 m/s<sup>2</sup>),  $\phi$  ; サクション [m],  $\gamma = -2.09 \times 10^{-3}$  [1/K] ; 表面張力の温度変化係数,  $\rho_l$  ; 液状水の密度 [ $kg/m^3$ ], 添字  $l, v$  ; それぞれ液状水, 水蒸気の値,  $t$  ; 時間(sec) である。

不飽和多孔媒体中の熱移動はDe Vries<sup>4)</sup>により論じられており、鉛直一次元で表わすと、

$$C \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) - (C_v q_v + C_l q_l) \frac{\partial T}{\partial z} - L \rho_l E, \quad (5)$$

$$\left. \begin{aligned} C &= \rho_s C_s (1-n) + C_l \rho_l \theta_l \\ L &= 4190 \{ 597.3 - 0.559(T-273.15) \} \end{aligned} \right\} (6)$$

となり、ここに  $\lambda$  ; 熱伝導率 [W/mK],  $C$  ; 湿潤土体積熱容量 [J/m<sup>3</sup>K],  $L$  ; 蒸発熱 [J/kg],  $C_s$ ,  $C_v$ ,  $C_l$ , それぞれ土, 水蒸気, 水の比熱 [J/kgK],  $\rho_s$  ; 土の密度 [ $kg/m^3$ ],  $q_v$ ,  $q_l$  ; それぞれ水蒸気, 液状水のフラックス密度 [ $kg/m^2s$ ],  $E$  ; 蒸発率 [1/s] である。

次に溶質移動の基礎式について述べる。溶質の移動は拡散と液状水による移流とでおこると考え、土粒子への吸着が無い場合についての移動則と保存則及びその両式より得られる支配方程式はそれぞれ、

$$q_s = -D_h \theta_l \frac{\partial C}{\partial z} + \left( \frac{q_l}{\rho_l} \right) C, \quad (7) \quad \frac{\partial}{\partial t} (\theta_l C) = -\frac{\partial q_s}{\partial z}, \quad (8)$$

$$\theta_l \frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( D_h \theta_l \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \left( \frac{q_l}{\rho_l} \right) \frac{\partial C}{\partial z} + E C \quad (9)$$

と表わせる。ここに  $q_s$  ; 溶質フラックス [ $m/s$ ],  $D_h$  ; 流体力学的分散係数 [ $m^2/s$ ] である。

前述した様に今回与えた環境条件では、降雨に比べ蒸発の影響が大きくなる様設定したため長期的に見れば定常的に蒸発が起きた場合に近い。そこで上式より蒸発中の温度分布, 含水率分布, 濃度分布についての定常解を求め基礎式の妥当性を検討する。

① 温度の定常解 ; 図-8 に示す様に乾燥帯と不飽和帯とに分け、乾燥帯では水蒸気顕熱, 不飽和帯では液状水顕熱と潜熱を考慮すると、(5) 式は、

$$\left. \begin{aligned} T &= C_1 \exp(C_v q_v / \lambda_a) + C_2, & (\ell - \ell' \leq z \leq \ell) \\ T &= C_3 e^{\xi z} + C_4 e^{\eta z} + T_1, & (0 \leq z \leq \ell - \ell') \end{aligned} \right\} (10),$$

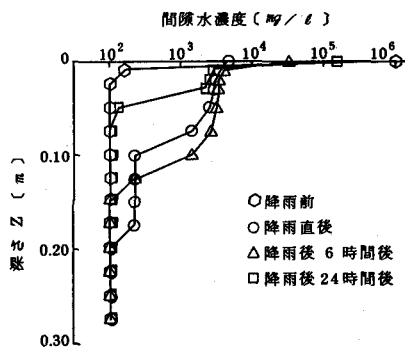


図-7 降雨後の塩素濃度分布

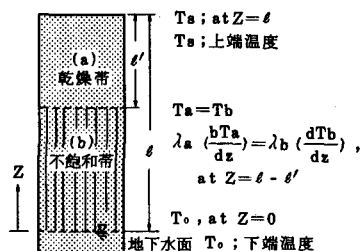


図-8 温度解析における境界条件

$$\xi = \frac{C_e q_e \pm \sqrt{(C_e q_e)^2 + 4\lambda_b L \rho_e k_1}}{2\lambda_b} \quad (11),$$

となる。ただし添字a, b ; それぞれ乾燥帯, 不飽和帯での値,  $C_1 \sim C_4$  ; 積分定数,  $\ell'$  ; 乾燥帯厚さで、仮定として  $E = k_1 (T - T_i)$  を導入している。ここに  $k_1$  ; 比例定数 [1/sK],  $T_i$  ; 初期温度である。計算値は図-4中に各Caseごとに示してあり良好に一致している。

② 含水率の定常解 ; (1)式において左辺を0とし積分すれば

$$D_\theta \frac{\partial \theta}{\partial z} + D_T \frac{\partial T}{\partial z} + k = C_5 \quad (12),$$

となり、ここで積分定数  $C_5$  は蒸発速度  $W$  で表わせるから、

$$\frac{d\theta}{dz} = \frac{W - k - D_T g(z)}{D_\theta}, \quad g(z) = \frac{dT}{dz} \quad (13),$$

となり上式は境界条件  $z=0$ ,  $\theta = \theta_{sat}$  (飽和体積含水率) より、Runge・Kutta・Gill法により計算できる。計算には次式を用いる。

$$\phi = \phi_0 \left\{ \left(1 - \frac{2}{n}\theta\right)^n + \eta(n - \theta) + \left(\frac{\theta_{sat} - \theta_r}{\theta - \theta_r}\right)^m \right\} \quad (14),$$

$$k = k_{sat} \left\{ (\theta - \theta_r) / (\theta_{sat} - \theta_r) \right\}^m \quad (15),$$

③ 濃度の定常解 ; 地表面の濃度は飽和濃度  $C_{max}$  (NaClでは27%) に維持され、土壤中の濃度分布は定常状態であると仮定すると、溶質フラックスについて次式が成立する。

$$-D_h \theta_\ell \frac{dC}{dz} + \left(\frac{q_\ell}{\rho_\ell}\right) C = \left(\frac{q_\ell}{\rho_\ell}\right) C_i, \quad C = C_{max}, \quad \text{at } z = \ell \quad (16),$$

ここに  $C_i$  ; 供給水濃度である。地表面付近の平均含水率

$\bar{\theta}$ を用い、 $D_h$ ,  $q_\ell / \rho_\ell$ を一定とすると、(16)式は、

$$C = C_{max} + C_i \left[ 1 - \exp \left\{ - \left(\frac{q_\ell}{\rho_\ell}\right) \left(\frac{\ell - z}{D_h \bar{\theta}}\right) \right\} \right] \quad (17),$$

と表わせる。図-9は定常状態であると思われるCase2の場合についての実験値と計算値を比較した図である。

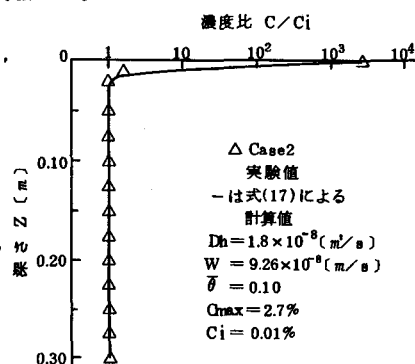


図-9 最終状態濃度比分布と計算値

## 5. 結 論

低レベル放射性廃棄物の浅層処分問題に関連する不飽和層内における溶質移動について吸着性、非吸着性トレーサーを用いて実験を行い定常解析を試み実験結果と比較検討した。その結果は以下の様に要約される。

- ① 降雨量に比べ蒸発量が大きく、かつ地下水位が高い場合には溶質の鉛直上方移動が卓越し、表面で濃縮・蓄積がおこる。さらに地下水位が低い場合においても降雨によって浸潤した水分が蒸発する事によって徐々に上方へ移動する。
- ② 提案した基礎式による定常解析は、温度、含水率について各Caseにおいて良好に一致した。また非吸着性トレーサーの濃度解析についても理論的取り扱いが妥当であったといえる。

## 謝 辞

本研究の遂行にあたっては、日本原子力研究所島茂樹研究員より実験の計画、化学分析に有益な御助言および御尽力を頂いた。ここに記して感謝したい。

## <参考文献>

- 1) 佐藤邦明他 ; 地表面付近の不飽和帯における溶質の鉛直移動に関する研究, 第32回水理講演会論文集, pp 113~118
- 2) 井上他 ; 不飽和砂カラム内における蒸発-降雨サイクル下での吸着性物質の移動, 第42回年講, II, pp 960~961
- 3) Philip, J.R. and D.A. De Vries : Moisture movement in porous materials under temperature gradients, Trans. Amer. Geophys. Union, Vol.38, 228~238 (1957)
- 4) De Vries, D.A. : Simultaneous transfer of heat and moisture in porous media, Trans. Amer. Geophys. Union, Vol.39, 909~916 (1958)