

II-89 廃液の地中処分に関する基礎的研究

京都大学工学部 正員工博 岩井金久

正員 大塩敏樹

工学〇寺島 泰

原子力の利用開発に伴ない、これら施設から排出される放射性廃棄物も増大し、廃棄物の諸状態に応じた各種処理法の研究が行なわれている。我門においては原子力関係施設が少なく、使用済核燃料の再処理などが行なわれていないため、この種の施設から廃棄される大量の高、中、低レベル廃液などの処理処分は問題となっており、原子力利用開発の進んだ欧米では現実の問題となっており、特に中、低レベル廃液を対象として廃液地中処分法が研究され、実施されている。

これは放射性廃液を地表の沼地あるいは人工地から自然浸透させる。地下水位より掘った溝(Trench)、井戸、地中にレンガ、砂利などで構築したむろ(Crib)に注入し地中への浸透を促し、それ地下水水位下の深部含塩水層に注入して、土壤の有するイオン交換吸着能により土壤に吸着固着あるいは同隙中に抑留し、地中で放射性崩壊せしめる方法である。

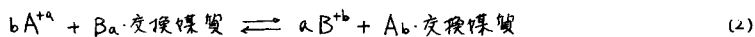
我門においてはこうした処分法は現在法律により禁止されているが、原子力産業発展の趨勢からみて、生活環境の汚染問題がなければこの種の処分法は将来廃液の有効な処分手段になると思われる。このために地質学、イオン交換、浸透、流動、拡散などの水理学的観点から基礎的研究を行なう必要がある。

今回は第一段階として、放射性イオンの地中における一次元的移動と、これに影響する地中交換媒質の交換容量、交換平衡関係についての研究結果を述べる。

イオン交換媒質中に一種の微量放射性カチオンAを含む溶液が流れるとする。この場合単位断面積、厚さ dx の薄層中での質量保存を考えると次式が求まる。

$$D \frac{\partial^2 C_A}{\partial x^2} - u \frac{\partial C_A}{\partial x} - \lambda (C_A + \frac{\rho}{f} q_A) = \frac{\partial}{\partial t} (C_A + \frac{\rho}{f} q_A) \quad (1)$$

流速が速く、浸入液中のイオンと交換媒質中に存在する他種イオンとの交換が、浸入液の各地点において平衡状態に達するまで行なわれる場合を考えてみる。こうした例は、地下帯水層、帯塩水層中での移動、それ土壤中への浸透などの場合におこると思われる。浸入イオンAと存在イオンB間の平衡関係



が、質量作用定数 $K_{A+B} = \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^a \cdot q_B^b}$ によ、表わされることについては明らかにされている。今の場合、Aイオンが微量であるから溶液中のA,Bイオン濃度 C 。(浸入原液濃度)、同相中A,Bイオン濃度 q 。(交換容量)に比して C_A, q_A が極めて小さく、 C_B, q_B を1と置いて近視すれば近似的に次の関係が成立する。

$$q_A = (K_{A+B})^{\frac{1}{b}} \left(\frac{q_B}{C_B} \right)^{\frac{a}{b}} \cdot C_A \quad (3)$$

この関係は、Aイオンがトレーサーレベルであれば液固相濃度の同じ直線関係が成立することを示すもので、 C_B が0.1以下の場合等温平衡関係がほぼ直線となることからもうなずける。Bの関係を仮定して小式に代入すると次式が得られる。

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} - N C_A = M \frac{\partial C}{\partial t} \quad (4)$$

ここに $M = 1 + K_d$, $N = \lambda(1 + K_d) = \lambda M$, $K_d = (K_{d0})^{\frac{1}{2}} \left(\frac{q_0}{C_0}\right)^{\frac{2}{f}}$ であり K_d は一般に分布係数といわれる値に相当する。

(1) 拡散 自己減衰が重視できる場合、(4)式において $D = N = 0$ とし、濃度前線移動速度 U は

$$U_A = \left(\frac{\partial x}{\partial t}\right)_A = \frac{u}{M} = \frac{u}{1 + (K_{d0})^{\frac{1}{2}} \left(\frac{q_0}{C_0}\right)^{\frac{2}{f}}} \quad (5)$$

よ、粘土鉱物などの交換媒質が持つ Ca イオンとより飽和している地下帯水層中へ、生物学的に危険度の高い ^{90}Sr や ^{137}Cs が移動する場合を考えると、各イオンの濃度前線移動速度は次のように表わされる。

$$U_{Sr} = \frac{u}{1 + \sqrt{K_{d0-Ca}} \left(\frac{q_0}{C_0}\right)^{\frac{2}{f}}} \quad (5-1), \quad U_{Cs} = \frac{u}{1 + \sqrt{K_{d0-Ca}} \left(\frac{q_0}{C_0}\right)^{\frac{2}{f}}} \quad (5-2)$$

(2) 拡散 自己減衰を考慮する場合、(4)式を $C(x, 0) = 0$, $C(0, t) = C_0$ の条件で解くと

$$\frac{C_A}{C_0} = \frac{e^{\frac{u}{D} x}}{2\sqrt{D M} \pi} \int_0^x \frac{x}{(t-3)^{\frac{3}{2}}} e^{-\frac{x^2}{4 D M (t-3)} - \left(\frac{u^2}{4 D M} + \lambda\right)(t-3)} dx \quad (6)$$

さらに、放射性イオンの半減期が短かく、流入地点から相当な距離 l の地点で濃度がほぼ 0 と仮定できる場合を考えると、 $C(x, 0) = 0$, $C(0, t) = C_0$, $C(l, t) = 0$ の条件のもとに (4) 式の解は次のようになる。

$$\frac{C_A}{C_0} = e^{\frac{u}{D} x} \left\{ \frac{\sinh \beta_0 (l-x)}{\sinh \beta_0 l} + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \frac{2 n \pi D}{M l^2} \cdot \frac{\sin \frac{n \pi}{l} (l-x)}{\beta_n} e^{-\alpha_n t} \right\} \quad (7)$$

$$\text{ここに } \beta_0 = \sqrt{\left(\frac{u}{2D}\right)^2 + \frac{N}{D}}, \quad \beta_n = \frac{D}{M} \left\{ \left(\frac{u}{2D}\right)^2 + \frac{N}{D} + \left(\frac{n \pi}{l}\right)^2 \right\}$$

上記各式の実験的検討は現在行なっている段階である。

次にイオンの移動に影響する二つの因子について検討する。バッチ、カラム法により測定した土壌、粘土、砂類の交換容量、各種二価カチオンと Na 型交換媒質に対する K_{d0} , S_r と Ca 型交換媒質に対する $\sqrt{K_{d0-Ca}}$ を表 1, 2, 3 に示す。その他 S_r - Na 間の交換平衡に対する PH の影響も検討した。こゝで実験結果から結論づけること

を簡単に述べると、(1) Na 型交換媒質に対する二価カチオンの親和性は相対的大であり、逆にこゝで二価カチオンを交換基と持つ土壌類に対する Na の親和性は極めて小さい。カチオンの種による親和性の順位は、 $Ba^{2+} > Sr^{2+} > Ca^{2+}$, $Sr^{2+} > Zn^{2+}$ の値同がみられる。土壌の種による順位は、黄色粘土 > 赤褐色粘土 > 黒褐色粘土である。(2) S_r の Ca 型土壌に対する親和性はあまり大きくない。(3) S_r - Na 交換に対する PH の影響は、 PH 約 4 以下で大きくなり S_r の

表-1 交換容量 (meq/g)

材 料	交換容量	バッチ法による値
黒褐色土壌 (耕地上土)	0.125	0.30
褐色土壌 (水田表土)	0.055	0.13
黄色粘土 (水田心土)	0.065	0.16
赤褐色粘土	0.115	0.27
黄白色粘土	0.125	0.30
カオリン	0.022	0.05
ベントナイト	0.418	4)
細砂	0.013	0.03
砂	0.003	0.01
グリーンサント	0.114	0.27

表-2 K_{d0}

	Zn	Ca	Sr	Ba
黒褐色土壌	101	94	82	70
褐色土壌	64	66	80	73
黄色粘土	191	158	168	196
赤褐色粘土	156	165	186	190
ベントナイト	120	109	102	186
グリーンサント	160	(64)		168

表-3 $\sqrt{K_{d0-Ca}}$

試 料	$\sqrt{K_{d0-Ca}}$
黒褐色土壌	1.22
褐色土壌	1.88
黄色粘土	1.08
赤褐色粘土	1.46
ベントナイト	1.35
グリーンサント	1.75
細砂	(0.69)

交換吸着が妨げられる。

実験方法については発表時述べる。

(記号説明) D : 拡散係数 (cm^2/sec), u : 流速 (cm), C_A : 放射性カチオン A 液相濃度 (meq/g)

q_A : カチオン A 固相濃度 (meq/g), λ : 自己減衰係数 ($1/sec$), p : 交換媒質の見掛けの密度 (g/cm^3), f : 間隙率, a, b : A, B イオンの原子価。