

京都大学原子力実験所 正員 筒井天寿

京都大学原子力実験所 正員 西牧研杜

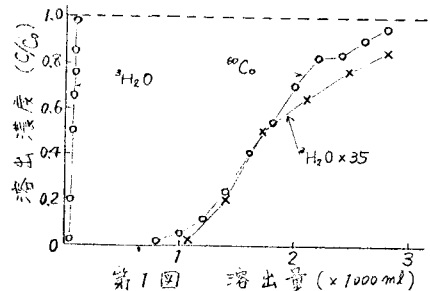
最近、わが国においても各地で原子力発電所が建設されているが、原子力発電所からは大量の放射性廃棄物が放出されると考えられる。放出された放射性廃棄物は地上に一次貯又は永久に保管される。

地上に保管された放射性廃棄物から放射性物質が事故等により溶出して地中に滲透した場合に放射性物質などのような挙動をするかも知る必要がある。そこで放射性物質として、原子力発電所から大量に放出されると予測される ^{60}Co をとりあげ、 ^{60}Co が地下水中に混入した場合にどのような挙動をするかを研究した。

試料砂としては、京都大学原子力実験所構内の帯水層より採取した砂を使用した。この砂は密度が 2.67 g/ml 、イオン交換容量が 0.032 meq/g 、透水性係数が 0.68 cm/min である。また構内の帯水層中の地下水には Ca^{++} が $30 \text{ ppm (as } \text{CaCO}_3\text{)}$ 含まれる。

1) 通常の帯水層中に ^{60}Co が混入した場合

^{60}Co は地下水と同じ速度で移動せず、砂のイオン交換能力のため、砂に吸着され、つぎに地下水に主として含まれる Ca^{++} によって脱離されるといった操作をくり返して砂層中を移動する。そこでカラムに試料砂 50 g と空けき率 0.45 をつめる。地下水に ^{60}Co と三重水素水をそれぞれ $10^4 \mu\text{Ci/ml}$ 程度混入したものを原水とする。三重水素水は地下水のトレーサーとして用いる。カラムに原水を 5 ml/min の速度で通



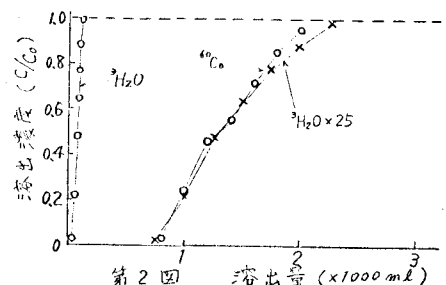
第1図 溶出量 (x 1000 ml)

水し、溶液を 100 ml づつ採取する。このうち 2 ml で ^{60}Co の放射能濃度を G.M 計数管で計測する。なお、

最初の 200 ml は 10 ml づつ溶液を採取し、蒸留により ^{60}Co と三重水素水を分離してから三重水素水の濃度を液体シンチレーションカウンターで計測する。原水の放射能濃度を C_0 とし、各溶液の放射能濃度を C として $\%C$ を計算し、通水量との関係をグラフに描くと第1図のような溶出曲線が得られた。

^{60}Co の砂に対するイオン交換が Ca^{++} に交代されると考えると、 ^{60}Co の移動速度は地下水の移動速度の $1/K_f$ となる。ここで、 $K_f = 1 + \{(1-f)/f\} \cdot \rho \cdot (K_{\text{Co-Ca}})^{1/2} \cdot (\rho_0/C_{\text{Ca}})^{1/2}$ ----- (1) である。

f は砂の空けき率、 ρ は砂の密度、 $K_{\text{Co-Ca}}$ は ^{60}Co と Ca^{++} の Mass Action Constant、 ρ_0 は砂の交換容量、 C_{Ca} は地下水中の Ca^{++} の濃度である。ゼーガー内で $K_{\text{Co-Ca}}$ を測定するとほぼ一定値 1.12×10^{-2} が得られたのでこの値より $K_f = 35$ が得られた。したがって第1図の三重水素水の溶出曲線を横へ 35 倍ひき伸ばしたものが ^{60}Co の理論溶出曲線である。第1図より ^{60}Co の理論溶出曲線と実測溶出曲線はよく一致していることがわかった。したがって帯水層の砂の

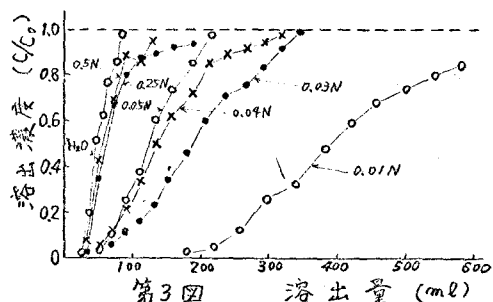


第2図 溶出量 (x 1000 ml)

容やす率、密度、空投容量および帯水層中の Ca^{2+} 濃度がわかれば ^{60}Co の移動速度が推定できる。また ^{60}Co の K_f が 35 というのは、同じ試料砂に対してすでにえた ^{90}Sr の K_f が 100, ^{137}Cs の K_f が 1900 にくらべてはるかに危険であることがわかった。

2) さらに硝酸性廃液で侵された帯水層中に ^{60}Co が混入した場合

再処理廃水のように硝酸性の廃液が帯水層を通過すると砂の表面および砂自体から大量の Ca^{2+} が溶出し、肉眼で半透明に変化するのが見られた。このような状態におかれた帯水層に ^{60}Co が混入した場合の移動状態をしらべた。カラムに砂を 50g つめ、まず 2N 硝酸溶液を 500 ml/day ぐらいの速度で 1ヶ月間通水し、カラムから Ca^{2+} が溶出しなくするのを確認した。このカラムに前述 1) の場合と同じ原水を通水し、溶出



曲線を第2図に示した。この溶出曲線は三重水素水の溶出曲線を横へ 25 倍ひきのげたものとよく一致するので推定で $K_f = 25$ と考えられる。1) の場合の $K_f = 35$ なので、帯水層は硝酸性廃液で侵された後も前にくらべて ^{60}Co の移動を遅らせる能力を7割程度有することを知った。

3) 硝酸性廃液中に ^{60}Co が含まれて帯水層中に混入した場合

H^+ が大量にあるため ^{60}Co のイオン交換能が H^+ に支配されると考えられる。したがって、まず 2N 硝酸溶液に ^{60}Co を混入してカラムに通水すると ^{60}Co は硝酸溶液と同じ速度で溶出したのでこの硝酸溶液が地下水でうすめられていく場合を考えた。地下水に硝酸溶液を加えて硝酸濃度を 0.5N から

0.01N まで各種作成したものにそれぞれ ^{60}Co と三重水素水を 1) の場合と同様に加えたものをもぎ廃水とする。カラムに砂を 50g つめ、もぎ廃水を通水し溶出曲線を第3図に示した。第3図において三重水

H^+ 濃度	0.5N	0.25N	0.05N	0.04N	0.03N	0.01N
K_f	1.19	1.24	2.46	2.71	3.58	8.01
K	1.53×10^{-1}	4.85×10^{-1}	1.18×10^{-1}	8.85×10^{-1}	7.51×10^{-1}	2.26×10^{-1}
K'	9.8×10^{-1}	6.2×10^{-1}	7.6×10^{-1}	7.1×10^{-1}	8.0×10^{-1}	7.2×10^{-1}

第1表

平均 $K' = 7.7 \times 10^{-1}$

素水の溶出曲線は便宜上各溶出曲線の平均値を用いた。さて帯水層中のイオン交換が H^+ に支配されると考えると(1)式は次のようになる。

$$K_f = 1 + \{(1-f)/f\} \cdot f \cdot K_{\text{Co-H}^+} \cdot (R_0/C_{\text{H}^+})^2 \quad \text{----- (2)}$$

ここでビーカー内では $K_{\text{Co-H}^+}$ は Ca^{2+} が溶出するため帯水層中と条件がかわり測定できないので第3図より K_f の値を逆に推定して第1表に示す。この K_f から $K_{\text{Co-H}^+}$ を逆算すると第1表のようになるが、 $K_{\text{Co-H}^+}$ は一定値を示さず、ほぼ H^+ 濃度に反比例しているのがわかった。これは ^{60}Co のイオン価が2価で H^+ のイオン価が1価であるが原因と思われる。そこで $K'_{\text{Co-H}^+} = K_{\text{Co-H}^+} \cdot (R_0/C_{\text{H}^+})$ なる値を考えると第1表のように $K'_{\text{Co-H}^+}$ はほぼ一定でその平均値は 7.7×10^{-1} となった。この結果(2)式は

$$K_f = 1 + \{(1-f)/f\} \cdot f \cdot K'_{\text{Co-H}^+} \cdot (R_0/C_{\text{H}^+}) \quad \text{----- (3)}$$

となり、(1)式と同じく簡単に H^+ 濃度に変化しても K_f の値を得ることができると知った。

以上の結果、 ^{60}Co が帯水層および含まれる廃液の化学的条件でどのように挙動を変化させるかも知った。また本実験では ^{60}Co の濃度がうすかったためラジオコロイドのようなものは測定されなかったがラジオコロイドのようなものと考えると ^{60}Co の地中での挙動は環境に対してさらに危険性を増すと考えられる。