

1. はじめに

近年原子力の利用が増加するにつれて放射性廃棄物の処分が重要な問題となってきた。いま地中処分を考えてみると、地下水の流れている地層すなわち帯水層中における放射性核種の挙動に関する研究が中心になっている。また地中処分の安全性の検討は核種が帯水層に混入した時点を出発点として人間にフィードバックされるルートを考えてなされている¹⁾。しかしながら放射性廃棄物は帯水層中ではなくその上部の通気層中に処分されるのが通常であるので、通気層中における核種の挙動が帯水層におけるそれに劣らず重要である。本研究では、地表面上の水深が一定で連続的に不飽和浸透流が生じている場合の通気層中における放射性核種の挙動を取り上げてみた。

2. 理論的検討

本節では従来から良く知られている帯水層不飽和流中の核種の挙動に関するス・3の理論を簡単に説明し、これを通気層不飽和流中の核種の挙動に適用してみた。なお土壌の飽和度 S は最初0であり、浸透水が到達した地点では一定値になるとして検討を行なった。

Hiestor-Kermeulen の理論——— Hiester等²⁾は拡散を無視した一次元の連続式をス次のイオン交換反応速度式と連立させ、核種の吸着していない砂層に一定濃度の水を通水するという条件の下に解き、Bessel 関数を含む複雑な理論解を得ている。

不飽和流における連続式が飽和流における連続式において空隙率 f の代りに $\phi = f \cdot S$ を代入したものであることから、この理論を不飽和流中核種の挙動にも適用するためには f の代りに ϕ を代入した次の様な理論式を用いなければならない。

$$\frac{C_A}{C_0} = \frac{J(rs, t)}{J(rs, t) + e^{(r-1)(t-s)} [1 - J(s, rt)]} \quad \text{----- ①}$$

$$\frac{g_A}{g_{\infty}} = \frac{1 - J(t, rs)}{J(rs, t) + e^{(r-1)(t-s)} [1 - J(s, rt)]} \quad \text{----- ②}$$

$$r = 1/K, \quad s = k\phi v/R, \quad t = k(V - \phi v)/(DgR)$$

ただし C_A , C_0 , g_A , g_{∞} はそれぞれ核種の液相中濃度、流入水中濃度、固相中濃度、交換容量で、 K は交換平衡定数、 k は一般的な速度係数、 v はカラム容量、 R は容積通水速度、 V は通水量、 Dg は飽和時の固相中濃度と液相中濃度の比、 J はFurnas等の導いた関数である。

Langmuir 型吸着の理論——— 著者の一人井上³⁾は交換剤を模型的に考え、交換剤の有する交換基の数からLangmuir型の吸着速度式と同一の律速式を導き、拡散を無視した一次元の連続式と連立させ、核種の吸着濃度が0である交換剤に一定濃度の溶液を通水するという条件の下に解き、指数関数からなる計算の容易な理論解を得ている。

さらにこの理論に飽和度を考慮に入れ、不飽和流中核種の挙動を示す次式の理論解を得た。⁴⁾

$$\frac{C_A}{C_0} = \frac{e^{C_0 K'(\psi - \phi \psi)}}{e^{K' a \psi} - 1 + e^{C_0 K'(\psi - \phi \psi)}} \quad \text{--- ③}$$

$$\frac{q_A}{a} = \frac{e^{C_0 K'(\psi - \phi \psi)} - 1}{e^{K' a \psi} - 1 + e^{C_0 K'(\psi - \phi \psi)}} \quad \text{--- ④}$$

ただし K' は吸着速度定数, a は核種の吸着飽和濃度, その他の記号は上述した通りである。

井上の理論——井上は地下水流速が非常に遅いことから土中至る所で交換平衡が成立しているとしなして, 次式の様な飽和流中核種の移動に関する基礎式を導いた。

$$(1 + \frac{1-f}{f} \rho R_d) \frac{\partial C_A}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} (D_x \frac{\partial C_A}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (D_y \frac{\partial C_A}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (D_z \frac{\partial C_A}{\partial z}) - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C_A) - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C_A) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C_A) \quad \text{--- ⑤}$$

ただし D は拡散係数, $\bar{v}$ は断面平均流速, ρ は土の密度, R_d は分配係数である。

いま次の様な時間に関する変数変換を行えば基礎式は地下水の流れそのものを示す式となる。

$$t = (1 + \frac{1-f}{f} \rho R_d) T \quad \text{--- ⑥} \quad K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho R_d \quad \text{--- ⑦}$$

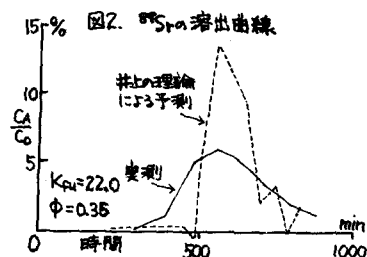
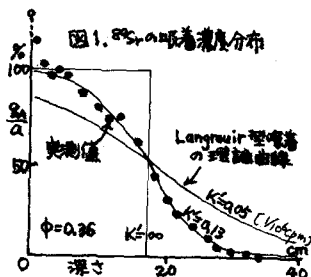
したがって放射性核種の移動速度は地下水流速の $1/K_f$ 倍になる。

不飽和流を考えると, 上述基礎式中左辺第2項の分母は液体部分を, 分子 $(1-f)$ は固体部分を示すことから分母の代りに $\phi = f \cdot S$ を代入したものが基礎式となる。従ってこの理論を通気層中核種の移動に適用するには時間変換係数として $K_{fu} = 1 + \frac{1-f}{\phi} \rho R_d$ --- ⑧ を採用すれば良い。核種は浸透水の流速の $1/K_{fu}$ 倍の速度で移動することがわかる。

3. 実験的検討

本節では前述した理論の妥当性を実験的に検討した。実験に使用したカラムは内径10cm, 高さ15cmのアクリル製円筒をフランジ結合したものであり, 砂としては豊浦標準砂を, 放射性核種としては ^{89}Sr を使用した。 ^{89}Sr の吸着濃度分布や溶出曲線を測定した。

図1, 2に示す様に帯水層中核種の挙動に関する従来の理論を通気層においても適用しうることが確かめたが詳細は講演時に述べる。実際には通気層中の流れは閉鎖的であり, 飽和度は時間的にも場所的にも変化するのに, 流れは連続, 飽和度は一定と仮定するなどの問題点もあり, さらに研究を行う必要がある。



参考文献

- 1) 例えば, 井上頼輝・森沢真輔; 放射性廃棄物の地中処分に関する一試算, 保健物理5, 75-80(1970)
- 2) N.K. Hiester & T. Vermeulen; Saturation Performance of Ion-exchange and Adsorption Columns, Chem. Eng. Progress vol. 48 No. 10 505-516 (1952)
- 3) 井上頼輝; イオン交換による放射性廃水の処理, 京都大学修士論文(1957)
- 4) S. Iwai, T. Goda, & Y. Inoue; A Fundamental Study on the Infiltration Characteristics of Radioactive Liquid Wastes, 京大工研報 第20巻第4号 pp. 350~361 (昭33年10月)
- 5) 井上頼輝; 放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究, 京都大学学位論文(1970)