

京都大学工学部 正 井上頼持 学 森澤真輔 学○許 邦福

1. 研究目的・方法

放射性廃棄物の最終処分法としての地中処分法には、廃棄物を直接地中に埋設する方法と廃棄物を固化してから埋設する方法がある。いずれもその最も重要且つ困難な問題は放射性核種の地層中での挙動を把握することである。従来の理論は、一次元的な場合のみを考慮することと放射性廃水の場合には欠くことのできる、拡散項を無視していることなどのため、複雑な挙動とする地下帯水層中で放射性核種の動きを説明するには、同理論を適用できる場合が多い。そこで、本研究は、諸外国で陸上処分によく使われている方法、即ち、放射性廃棄物をセメント固化し、地中に埋設するという場合を想定し、模擬放射性廃棄物固化体および地層模型を用いて、セメント固化体からの放射性核種の溶出、そして、地層中での挙動を実験的に検討し、その結果をトリチウムの拡散実験の結果を用いて理論的に解析した。

2. 予備実験

予備実験として、核種の溶出比、試料砂の交換容量および分配係数を調べた。それを Table 1 に示す。 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co は保健物理上重要な核種であり、溶出比の観点から見れば、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs が大きい。しかし、 ^{137}Cs は分配係数も大きいので、溶出した後、地層中ではほとんど動かず、従って、本実験では、 ^{90}Sr が重要な核種となる。

3. 恒温地層模型による実験

帯水層中での核種の移動を論ずる従来の理論は、実用性を欠くものが多くある。そこで、著者の一人井上は、核種の動きと地下水の動きと関連して予測する理論を提案した⁽²⁾。この理論によれば、地層の空隙率、土の密度および核種の分配係数 K_d から、あらかじめ、 K_f ($K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho \cdot K_d = \frac{1}{f} = \frac{V}{V_a}$) を計算しておけば、水のトレーサーを用いて、地下水の動きを調べることにより、放射性核種の地下帯水層中での動きを予測することができる。本研究の主実験は恒温地層模型による実験である。地層模型は二重の水槽からなり、槽内に日本原子力研究所構内の砂 306 Kg を深さ 50 cm、空隙率 35.6% とするようにはりつけた。槽内に埋設したセメント固化体の直径は 19.6 cm、高さは 51 cm である。固化体中に封入した核種と放射エネルギーを Table 2 に示す。固化体を地層模型内に設置し、模擬地下水として、水道水を供給することによって、実験を開始した。密度流の影響を除くために、槽内の温度を $20 \pm 2^\circ\text{C}$ に調節した。槽内の流速分布を試作した微流速計で調べた。その測定値は Re-

Table 1 Elution Ratio and Distribution Coefficient of Radio nuclide

Radio nuclide	E.R. Mt/Mo after 70d.	D.C. Kd [ml/gr]
^{90}Sr	5.8×10^{-2} x	5
^{137}Cs	4.0×10^{-1} x	695
^{60}Co	3.2×10^{-4} x	25
^{59}Fe	1.3×10^{-3}	11
^{54}Mn	7.7×10^{-3}	413
^{65}Zn	6.9×10^{-5}	1210
^{110m}Ag	2.1×10^{-5}	285

Exchange capacity of the sample sand is 18.32 $\mu\text{eq/gr}$

x: From literature (1)

Table 2 Radio nuclides and their Activities in the Solid Waste of this work

Radio nuclide	Half-life	Activity [μCi]
^{90}Sr	27.7 y.	5000
^{137}Cs	30 y.	6
^{60}Co	5.2 y.	100
^{59}Fe	45 d.	0.01
^{54}Mn	300 d.	2.5
^{65}Zn	244 d.	5
^{110m}Ag	270 d.	4

laxation 法により計算した流速の理論値とほぼ一致している。また、放射性核種の地層内での拡散状況を把握するため、トリチウムを地下水のトレーサーとして用いて、地層内での地下水の拡散状況を調べた。地層への流入水、流出水の水質および地層間隙水中の放射能量を一定時間ごとに測定した。その全β線放射能濃度の分布を示すと、例えば、実験開始後5日、深さ30cmのところでの濃度分布はFig. 1の示す通りである。

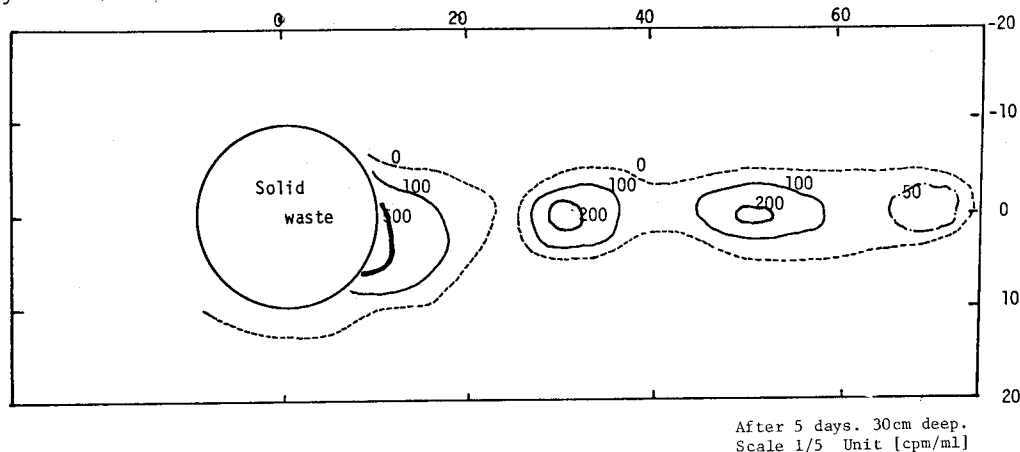


Fig. 1 Distribution of total beta activity

4. 結論

本研究を通じて、得られた結論を整理すると、次のようになる。

- 1) 固化体から検出可能な程度大量に出てくる核種は ^{90}Sr とその娘核種 ^{90}Y である。 ^{90}Y は水溶液中ではradio-colloidを形成し易く、従来イオン交換現象に基づく理論からは解析できない。新しい理論の検討が今後必要であろう。
- 2) 本実験では白金電極による実測、数値計算およびHTOの拡散実験から、地層内での水流状況を把握した。槽内では核種が一様に移動せず、密度流が存在することが観測された。これは主に、温度の微調整に問題があるほか、わずかながら、固化体中からの無機質の溶解分の影響も考えられる。このため、地層中での ^{90}Sr はFig. 1の示すように、その濃度分布が連続的である。これは連続的濃度分布の解と与える拡散方程式からは予測し難い現象である。
- 3) 固化体からの核種の溶出には、速度の大きい初期溶出効果が認められた。但し、比較的速く定常状態に達することが分かる。従って、地中処分への安全評価を行なう場合には、定常状態での評価計算を行なえば、十分であることが推察される。
- 4) HTOの拡散実験結果を用いると、 $y=0$ 軸上での ^{90}Sr の移動速度は前述の井上の理論により精度よく予測できる。但し、二つの実線源としてのHTO拡散実験より線線源としての ^{90}Sr の移動速度への予測は実現象とは合致しなかった。これは二つの実線源から線線源への近似が妥当であることが考えられる。今後、多数実線源より線線源への近似を行なって、更に精度よく予測を行なう必要がある。

参考文献

- 1) 寺島 泰; 放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分に関する研究, 京都大学学位論文(1968)
- 2) Inoue, Y., Investigation of deep well injection of radioactive waste, Doctoral thesis, Univ. of Calif. (1961)