

京都大学工学部

正会員 井上 頼輝

正会員 森澤 真輔

学芸員 ○ 馬原 保典

1. 研究目的・方法

放射性廃棄物の最終処分有効な一つの方法として地中処分が考えられる。地中処分は、土壌の持つ陽イオン交換能(数%)を利用するものである。放射性核種が土壤中を移動する場合土壌とイオン交換吸着反応を行ないながら地下水の流れあるいは雨水の浸透から一定割合で遅れて移動する。そこで地中処分の安全評価を行なうには、地中での放射性核種の挙動を考える際、地層を主に核種の動きが地下水の流れに支配される帯水層と、核種の動きが雨水の浸透に支配される通気層とに分けて考える必要がある。帯水層での研究は従来からよく進んでおり核種の挙動をかなり精度よく把握することが可能となってきたが、通気層での研究は、まだ不十分である。本研究では、まず通気層における核種移動と帯水層での核種移動の理論を修正適用する可能性を実験的に検討した。更にセメント固化体からの核種溶出実験を行ないその結果をセメント固化体を用いない場合の通気層における核種の挙動実験(予備実験)結果と比較検討した。

2. 予備実験(通気層模型地層内での核種移動実験)

帯水層における核種移動に関する理論として、著者の一人井上は水の動きをトレーラーを用いて調べ、次式 $K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho \kappa$ (1) (ここに f : 核種の移動に関する時間尺度 t ; 地下水の移動に関する時間尺度 f ; 地層の空隙率 ρ ; 土砂の密度 κ ; 核種の分配係数) で定まる K_f 値を使用することによって予測できることを提案した⁽¹⁾。この理論を通気層に修正適用するために地層内の飽和度 S を考慮することによって、帯水層の場合と同様に $K_f = K_{fs} = 1 + \frac{1-f}{fS} \rho \kappa$ (2) を得ることができる。更に井上が与えた核種の一次元拡散理

論式にも飽和度 S を考慮して通気層に修正適用すると解析解として次式

$$\frac{C}{C_0} = \frac{S}{S_0} - \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left(\frac{x - \sqrt{D_{eff}} \sqrt{K_{fs}}}{2\sqrt{D_{eff}} \sqrt{K_{fs}}} \right) \quad (3)$$

(ここに C_0 : 土壌内飽和吸着濃度; 土壌吸着濃度 D_m ; 拡散係数 D ; 水の浸透速度 x ; 核種の移動距離) を得る。

予備実験では、アクリル製フランジ管(内径50[mm], 高さ30[cm])

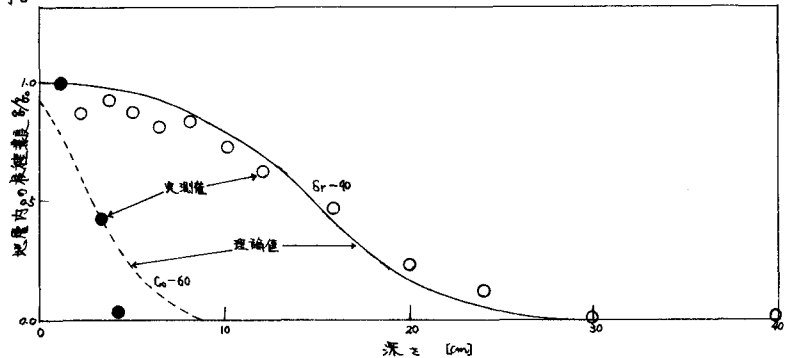


Fig-1 $Sr-90$, $Cs-137$ の地層内濃度分布

を5段積みにして作った通気層模型装置に、密度2.65[g/cm³]の砂470[g]を砂層高さ45[cm]空隙率41[%]となるよう充填した。模型装置最上部より放射性核種 $Sr-90$, $Cs-137$ を含む水204[ml]を降雨強度807[mm/h]としてふらせた。降雨経路中の地層内の飽和度は35[%]であった。水のトレーラーを使って測定した拡散係数 D_m は0.02[cm²/s]であり、使用した核種 $Sr-90$, $Cs-137$ の分配係数は各々387[ml/g], 1111[ml/g]であった。そこで $Sr-90$ と $Cs-137$ の K_{fs} は各々45.8, 20.4となる。 $Sr-90$ と $Cs-137$ の地層内濃度分布と理論曲線ともFig-1に示す。理論曲線と実験値とは、ほぼ一致していることが分る。

3. 通気層模型によるセメント固化体からの核種の溶出実験

前述のアクリル製フランジ管を5段積みにして作った通気層模型装置に密度2.65[g/cm³]の砂300[g]を砂層高さ45[cm]空隙率41[%]となるよう充填し砂層表面から2[cm]の深さで通気層模型装置断面の中心にセメント固化体を埋設した。

セメント固化体の直径は15[cm]、高は4[cm]の円柱状で、水セメント比0.4でセメント固化体中には、 ^{90}Sr 5[mCi]とHDO 5[mCi]を含んでいる。この模型装置に上部より、スプレーによって水道水を雨として約800[mm]連続的にかけ、地層表面に均一となるよう降らせた。実験期間中の平均降雨強度は50[mm/分]総降雨量は約8000[l]で、これは年間降雨量800[mm]の地域に約27年分に相当する。地層内の平均飽和度は38[%]、地層内降雨浸透速度は0.7[%/min]であった。模型装置からの流出水のPHは連続的に自動測定され、総硬度およびHDO濃度は、一定時間ごとに測定した。降雨停止後地層内の砂を一定量サンプリングして、 ^{90}Sr の砂中濃度を測定して、 ^{90}Sr の濃度分布を測定した。模型地層の縦断面に於ける ^{90}Sr 濃度分布をFig-2に示す。固化体に接した砂の ^{90}Sr 吸着濃度が約5000[cpm/g]であることから分配係数の定義式 $\bar{q} = C_s \cdot K_d$ (4) (ここに $\bar{q}$: ^{90}Sr の土壌中飽和吸着濃度 C_s : 固化体表面での浸出液中の ^{90}Sr 濃度 K_d : 不飽和時の分配係数値) を使って固化体からの ^{90}Sr の浸出濃度を推定すると $C_s = 3500$ [cpm/g]と予測される。

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) 雨水が地層を構成する土砂ならびにセメント固化体と接触すると浸透水中のCa+Mg濃度は上昇する。その上昇する割合は土砂みの場合に比べてセメント固化体が存在する場合の方が大きくなることかわかる。Ca+Mg濃度の上昇は雨水の浸透量の増減と共に増減をくり返し長時間の浸透の結果はば一定値に落ち着くものと思われる。このことは、長時間の雨水浸透によってセメント固化体が、必ずかなから浸食されていることを示唆しているとも受け取れる。浸透水のCa+Mg濃度変化と分配係数 K_d との関係性を考慮した核種移動理論を検討する必要がある。
- 2) 模型透水層からの流出雨水のPH変化を追跡すれば、その変化の様子は、浸透雨水中のCa+Mg濃度変化と非常に密接な関係を持っているように思われる。PH変化はCa+Mg濃度変化に先行して変化するのである。またPH変化と三重水素水の固化体からの溶出曲線との間にも相関がみられる。浸透雨水のPHをチェックすることによって固化体からのトリチウムの溶出開始時期を捕えることが出来ると思われる。PH変化がトリチウムの流出に先行するのはトリチウムが固化体から溶出するのに時間を要するからであろう。流出水のPH変化の原因は雨水浸透水と充填砂との相互作用とセメント固化体からのアルカリ度の溶出とに起因するものと思われる。用いた砂は、ほぼ中性ないし弱アルカリ性の砂であるから、前者の要因によるPH上昇は最大PH8.2までで終り、主として浸透初期のPH変化の原因となる。一方後者によるPH変動は、PH8.4~8.7の範囲で生じ比較的時間継続する。両変動はPHを連続的に測定することによって比較的容易に識別できると思われる。今回の実験では、確認することができなかったが浸透水のPH変化は ^{90}Y の移動にも先行するものと思われる。放射性能測定にくらべるとPH測定は比較的容易であるから、放射性物質の移動をモニターする場合に地下水のPH変化に注意することが有効であると考えられる。
- 3) 固化体からの ^{90}Sr の溶出は非常に緩慢であり ^{90}Sr の模型地層内での良かり方は、固化体周辺の浸透雨水の流れの方向と速度に影響される。固化体から溶出した放射性核種の高濃度吸着帯は、固化体のごく近い部分に限られる。

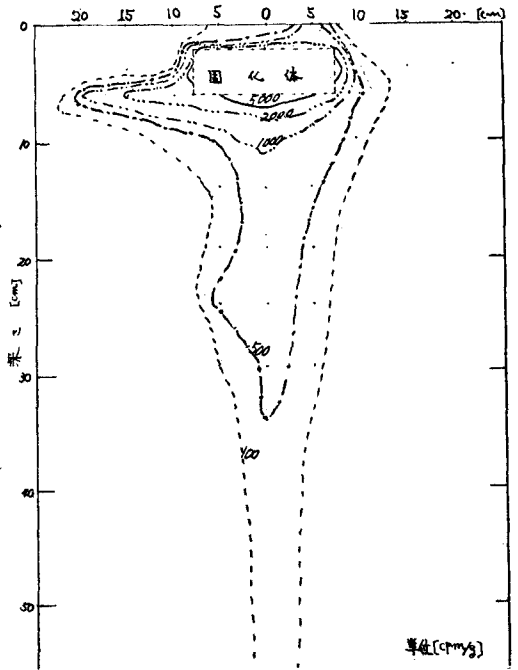


Fig-2 ^{90}Sr の縦断面濃度分布

参考文献 (1)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 84年)

(2)Y. Inoue & W.J. Kaufman; Health Physics. Vol.9. pp 705~715 (1963)