

京都大学工学部 学 〇倉元 秀樹

京都大学工学部 正 森澤 真輔

京都大学工学部 正 井上 頼輝

(1) はじめに

放射性廃棄物を地中に処分する上、処分サイトから放射性核種が漏出してくる可能性がある。漏出した放射性核種の帯水層における移動速度は、土壌粒子への吸着によって地下水流速よりも遅くなることが知られている。本研究では、帯水層での核種移動を対象に展開された解析手法を、花崗岩の破砕粒子層での核種の挙動に適用する上での問題点、解析手法の適用可能性等について検討する。検討対象の放射性核種としては、保健物理学上重要な Sr を選定した。

(2) 放射性核種の地中移動を予測する理論

未固結の帯水層における放射性核種の移動速度を予測する方法として次の式が知られている。^(*)

$$v_A = v_w / K_f, \quad K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d$$

ここで、 v_A, v_w : それぞれ核種、地下水の移動速度、 f : 地層の空隙率、 ρ : 土壌密度、 k_d : 分配係数。

ただし上式の関係は、次の条件が満足される場合に成立する。

- (1) 地下水の流線網が時間的に変化しない。
- (2) 地下水の拡散係数と放射性核種の拡散係数とは等しい。
- (3) 地下水および土壌中の放射性核種の吸着に関して常に平衡状態にあり、分配係数が時間によって変化しない。

(3) 実験

実験Ⅰ: 陽イオン交換容量の測定

破砕した花崗岩粒子を7つの粒度区に分け、各区の粒子について標準酢酸アンモニウム法で陽イオン交換容量を測定した。

実験Ⅱ: 分配係数の測定

分配係数 k_d は、液相中の核種濃度 C と固相中の核種濃度 $\bar{C}$ とが平衡状態にある場合に、 $k_d = \bar{C}/C$ (ml/g) として定義される。分配係数はバッチ法によって測定し、上澄液中の Ca+Mg 濃度、pH、ヒアルカリ度も測定してそれぞれとの相関を観察した。

実験Ⅲ: カラム実験

試料花崗岩を充填したガラス製カラムの空隙を水で飽和し、HTO (ホットレーサー) および ^{85}Sr の水道水溶液を通水してカラムの流出端で流出液を採取し、流出液中の濃度を測定して HTO および ^{85}Sr の流出曲線を求めた (飽和実験)。この実験のあと核種を含まない水道水を通水してカラム内に吸着保持された ^{85}Sr を洗い流し、カラムの流出端での濃度を測定して ^{85}Sr の溶出曲線を求めた (溶出実験)。

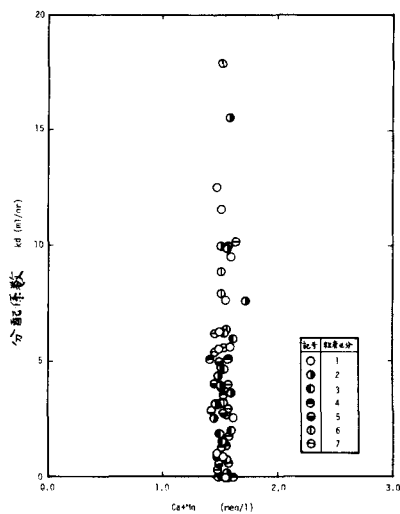


図1 分配係数とCa+Mg濃度との関係

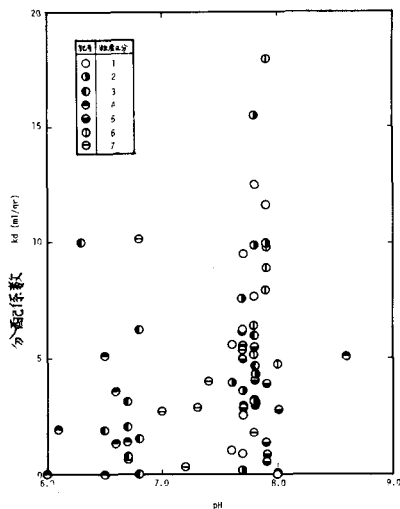


図2 分配係数とpHとの関係

(4) 実験結果と考察

花崗岩の陽イオン交換容量と比表面積(粒子を球と考えて単位重量あたりの表面積を計算したもの)との相関を調べた結果、粒径の小さい試料花崗岩については陽イオン交換容量は比表面積にほぼ比例するが、粒径の大きい試料については交換容量と比表面積との間に明確な相関が存在しないことがわかった。

分配係数とCa+Mg濃度およびpHとの関係は図1, 2に示した。図からわかるように分配係数とそれぞれの因子との相関関係は認められない。他の因子との相関もまた明確でなく、分配係数の変化がどのような環境因子に影響されるのかは、この実験結果から明確にできなかった。

すでに紹介した理論によると、地下水の移動を測る時間スケール T を K_d 倍すれば放射性核種の移動を測る時間スケールも($=K_d T$)を得ることができ、この理論から地下水の移動を知ることにより放射性核種の移動を予測することができる。カラム内の流量を一定に保っていることから、HTOのカラム流出曲線を通水量軸方向に K_d 倍すれば、それは ^{90}Sr の流出曲線に重なりと予測することができる。流出曲線についても同じ方法で予測した。ただし予測曲線はHTOの流出曲線を上下逆にしたものを用いた。HTOは花崗岩に吸着されないで、溶出過程とではカラム内の水の混合拡散の機構が同じであると考えたからである。ここではカラムBの実験結果を図3, 4に示す。図をみるとHTOの流出曲線(溶出曲線)から推定した ^{90}Sr の予測流出(溶出)曲線と実測流出(溶出)曲線とは必ずしも良い一致を示していない。ただし風化花崗岩を用いたカラム実験については比較的良好な一致が認められた。この原因は、放射性核種と花崗岩との反応に時間おくれがあり、固相と液相の間で反応が平衡に達していないことにあると考えられる。このような場合 K_d 値は ^{90}Sr の流出と溶出が水そのものの移動から平均的にどの程度おくれるかを知る指標にはなるが、濃度分布までを予測するためには利用できない。次に溶出残存量の飽和吸着量に対する比率を計算した。その結果、一般に花崗岩に吸着された ^{90}Sr の溶出が容易でないことがわかった。

(5) 結論

本研究によって得られた主要な結論は以下になる。(i)未固結の土壤層中での移動を予測するために開発された理論は、花崗岩層中での核種の平均的な移動速度を予測するために利用することができる。(ii)ただし移動前面(フロント)

での濃度分布を推定するためには、核種と岩石との反応の反応時間を考慮する等の改良が必要である。

(iii)岩石と放射性核種との反応特性を記述する指標である分配係数が、どのような環境因子によつて変化するかを解明する必要がある。

参考文献 井上頼輝「放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究」1970年

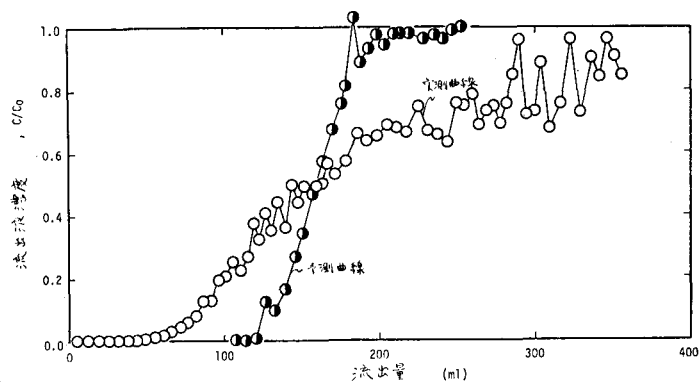


図3 カラムB(平均粒径0.65mm)の流出曲線($K_d=6.76$)

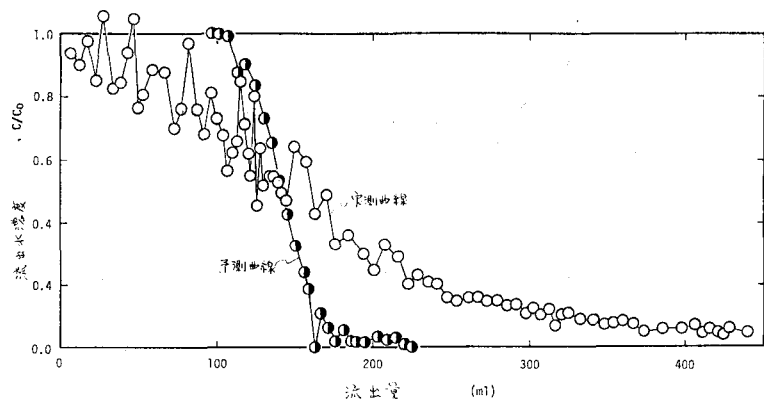


図4 カラムBの溶出曲線($K_d'=6.00$)