

埼玉大学工学部 正会員 佐藤 邦明
三菱金属(株)(研究生) 〇正会員 佐々木 康夫

1. はじめに

原子力産業廃棄物の保管や処理における安全性評価の際には、核種の上昇や岩盤中の挙動の把握は極めて重要視され、種々の研究がなされている。我々は岩盤中の核種挙動把握の第一歩として、2種の岩における ^{60}Co 、 ^{137}Cs の混合溶液による分散実験を試み、先の岩盤力学に関するシンポジウムでその状況を報告したが、今回はそれらの結果の解析について報告する。

2. 実験方法と結果

実験は高压ガスにより一定圧力の溶液を試料上面に送り浸透を起させ、それを定期的に採取し破過曲線を得ようとするものである。図-1に実験装置の概略と試料部分、濃度測定装置略図を示したが、装置は高压用途実験装置を用い、溶液に放射性核種を含み高压力で浸透を起させるため、万が一溶液の漏洩や飛散に備え溶液タンクと試料部分はビニールフィルムで風張りしたステンレス製容器に収めた。用いた試料は茨城県産の稲田花崗岩と神奈川県産の新小松安山岩で、径55mm、長さ150mmのいずれも600℃に加熱後水中急冷により人工的に微細な亀裂を生じさせたもので、稲田花崗岩は上面から50mm、100mm、新小松安山岩は25mm、50mmの位置に浸透溶液採取管が設けられている。用いた核種の濃度や試料の物性値は表-1に纏めて示した。1回の溶液採取量は2滴とし、その量は秤量器による重量法で求めた溶液、バックグラウンド補正のための純水と共にゲルマニウム半導体検出器、波高分析装置で同時に3核種測定した。実験結果は図-2に稲田花崗岩、図-3に新小松安山岩の場合をそれぞれ示したが核種の使用量上の制約からやむを得ず途中で実験を中止したので面試料濃度比 C/C_0 は既知に達してはいない。面図において、検出される核種の順序は稲田花崗岩が ^{85}Sr 、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、新小松安山岩が ^{85}Sr 、 ^{60}Co で両者は異なっている。検出時間差は ^{60}Co 、 ^{85}Sr は比較的小さいが ^{137}Cs はかなり遅れ、新小松安山岩では検出されない。これは岩種(構成鉱物の相違)により吸着されやすさ、核種やその濃度が異なること示す。また、濃度比 C/C_0 がスムーズな増加を示しているのは浸透流量の経時変化が示す様に、実験環境の温度変化による浸透流量や吸着度合の変化、試料中の浸透流路の目詰り等のためと考えられるが、新小松安山岩の54日目以降の一方的な濃度比の減少と合せ、その理由は明確でない。更に、今回の初期浸透流量と別に求めた虚水の分散係数から計算した点線で示す破過曲線と比較すると、放射性核種の場合は吸着効果が明らかに大きいかと判る。

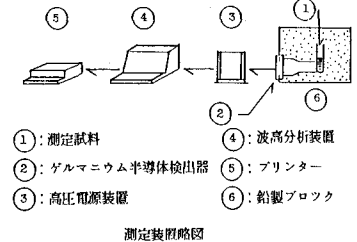
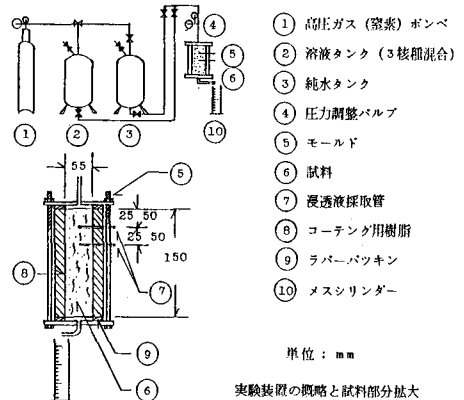


図-1 実験装置と測定装置

表-1 試料岩石名と試験結果

		稲田花崗岩	新小松安山岩	
密 度	($\times 10^{-3}\text{kg/m}^3$)	2.57(2.85)	2.45(2.45)	
空 隙 率 (%)		6.10(0.810)	15.5(8.03)	
平均透過流速 (m/s)		4.20×10^{-5}	4.08×10^{-6}	
平均透水係数 (m/s)		1.69×10^{-7}	2.53×10^{-8}	
分 配 係 数 Kd	稲田花崗岩 $\lambda=0.05\text{mm}$	^{60}Co 89.6	109	
	新小松安山岩 $\lambda=0.025\text{mm}$	^{85}Sr 72.6	351	
		^{137}Cs 121	—	
	稲田花崗岩 $\lambda=0.10\text{mm}$	^{60}Co 89.6	—	
分 散 係 数 D (m^2/s)	新小松安山岩 $\lambda=0.05\text{mm}$	^{85}Sr 72.6	—	
		^{137}Cs —	—	
	稲田花崗岩 $\lambda=0.05\text{mm}$	^{60}Co $1 \times 10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$	$4.78 \times 10^{-12}\text{m}^2/\text{s}$	
		^{85}Sr $6.78 \times 10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$	$1.20 \times 10^{-11}\text{m}^2/\text{s}$	
新小松安山岩 $\lambda=0.025\text{mm}$	^{137}Cs $4.85 \times 10^{-10}\text{m}^2/\text{s}$	—		
	稲田花崗岩 $\lambda=0.10\text{mm}$	^{60}Co $1 \times 10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$	—	
新小松安山岩 $\lambda=0.05\text{mm}$	^{85}Sr $6.78 \times 10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$	—		
	^{137}Cs —	—		
使用核種		^{60}Co	^{85}Sr	^{137}Cs
濃度 $\mu\text{Ci/g}$		1×10^{-2}	2×10^{-2}	1×10^{-2}
半 減 期		5.2 年	65 日	30 年

3. 結果の解析

今回実験した核種の岩石試料中の挙動を数量的に把握するには、核種の吸着効果を考慮する必要がある。今、吸脱着反応を支配する方程式として

$$g = K_d \cdot C \quad (1)$$

の形式を考えると、分散方程式は

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[C + \frac{1-f}{f} \rho g \right] = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - U \frac{\partial C}{\partial x} \quad (2)$$

と書ける。ここに、 C は溶液中の溶質濃度、 f は空隙率、 D_x は水の浸透方向分散係数、 U は水の平均流速、 ρ は試料の真密度、 K_d は分配係数である。水に対する溶質の移行速度の遅れ程度は遅延係数 R_f を用い(3)式の様に表われ、(2)式は(4)式の様になる。

$$R_f = (1 + \frac{1-f}{f} \rho K_d) \quad (3)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D_x}{R_f} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{U}{R_f} \frac{\partial C}{\partial x} \quad (4)$$

ここで、 D_x 、 U 、 R_f は一定値と考えると D_x/R_f 、 U/R_f も一定値となり、改めてこれらを D 、 U と置くと(4)式は吸脱着反応のない場合と同形の式となる。この解は $C(0, t) = 0$ $t \geq 0$ 、 $C(\infty, t) = 0$ $t \geq 0$ 、 $C(x, 0) = 0$ $x > 0$ の下で

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x - Ut}{2(D \cdot t)^{1/2}} \right\} + \frac{1}{2} \exp \left(\frac{Ux}{D} \right) \cdot \operatorname{erfc} \left\{ \frac{x + Ut}{2(D \cdot t)^{1/2}} \right\} \quad (5)$$

となる。実験された浸透度破過曲線から分散係数を決定するには(5)式の解曲線に色々な D 、 U 、 x の値を与えて理論曲線を得、実験結果と比較しbest fittingさせることにより行った。このようにして得られた分散係数は分配係数と共に特性値を示している表-1に示し、図-4、5に代表的な例を挙げた。図-4は稲田花崗岩の ^{85}Sr の分散係数が $6.78 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ 、分配係数が72.6の場合で理論曲線は $x = 0.05$ 、 0.10 m と同じ値を用い描いてある。理論値は初期には実験値より小さく、ある時間からは実験値より大きくなっているが、大まかには両者は合っていると見えて良い。図-5は新小松安山岩の ^{60}Co の分散係数が $4.78 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、分配係数が100の場合で実験開始から1296時間までの実験値に合せてあり、両者は比較的良く合っている。今回の実験では稲田花崗岩の場合、分散係数は $1 \times 10^{-9} \sim 4.85 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ 、分配係数は72.1~121、新小松安山岩の場合、分散係数は $1.20 \times 10^{-11} \sim 4.78 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 、分配係数は100~351の値が得られ、新小松安山岩の分散係数は稲田花崗岩のそれより100~500倍程になっている。また、浸透流量の経時変化を、 $Q = a e^{bx} + C$ で近似させた結果、稲田花崗岩の場合は $a = 7.08$ 、 $b = -0.113$ 、 $C = 368$ 、新小松安山岩の場合は $a = 5.24$ 、 $b = -0.0093$ 、 $C = 115$ であった($Q = \text{ml/day}$)。

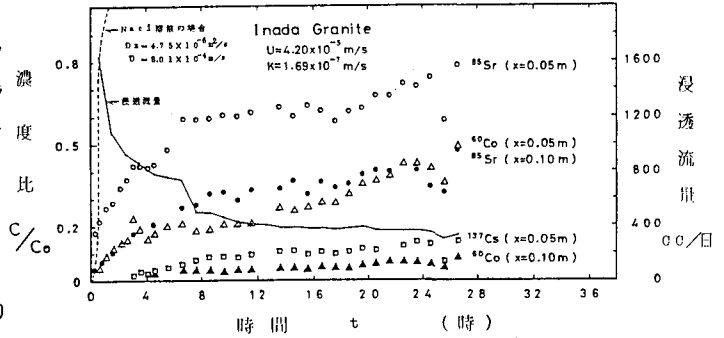


図-2 稲田花崗岩の実験結果 (実験時間27日目までの結果を示す)

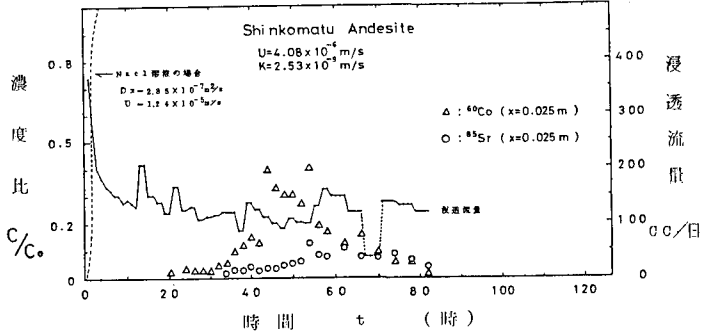


図-3 新小松安山岩の実験結果 (実験時間82日目までの結果を示す)

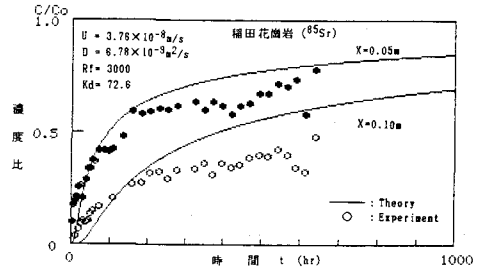


図-4 稲田花崗岩の ^{85}Sr の解析結果

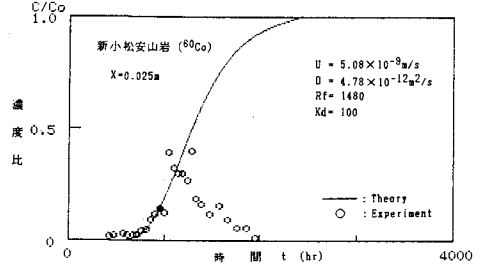


図-5 新小松安山岩の ^{60}Co の解析結果