

再処理廃水中の放射性核種の地中移動について

京大原子炉 京大工* 正員 筒井天壽 正員 西牧研社 学生員 ○赤木文行*

〔研究目的〕

使用済み核燃料要素の再処理から生じる再処理廃水が地下タンク貯留中に何らかの事故等により漏洩した場合、あるいは地中処分された場合、高放射性の再処理廃水中に含まれている放射性核種の挙動に十分注意しなければならない。そこで、本研究は再処理廃水が滞水層に混入した場合を取り上げ、再処理廃水自体の動きおよび再処理廃水中の放射性核種の挙動を解明するために基礎的な研究を行なった。

再処理廃水は比重が1.1~1.4と地下水に比べて大きいので、密度流を生じて地下水と同様に流動しない。そこで、一方向に一定速度で地下水が流れている均一等方性の滞水層中に再処理廃水が混入した場合の廃水自体の動きを〔実験Ⅰ〕で検討した。

また、再処理廃水はほとんどが強硝酸性(2~8N)であるので、再処理廃水が通過すると土壤は硝酸に侵されてイオン交換性能が変化する。土壤に吸着された放射性核種が再処理廃水から取り残され、後から流れてくる地下水と共に Ca^{++} に支配されながら硝酸に侵された土壤中を移動する状態について〔実験Ⅱ〕を行なって、放射性核種のうち保健物理上危険な ^{90}Sr と ^{137}Cs の移動速度を求めた。

〔実験Ⅰ〕

廃水自体の動きを調べるのが目的であるから、土壤の代りに吸着を起さないスチロール樹脂を充填し、水道水を一定速度で一様に流し、再処理廃水のTracerに比重1.1のNaCl溶液を使用して水面上から10ml投入し、NaCl濃度の時間的場所的变化を白金電極で測定した。(図-1参照)

〔実験Ⅱ〕

京都大学原子炉実験所構内の滞水層から採取した砂と地下水を使用した。この砂は密度 2.47g/cm^3 、有効径 110μ 、均等係数1.73である。地下水中の Ca^{++} 濃度は 30ppm as CaCO_3 である。

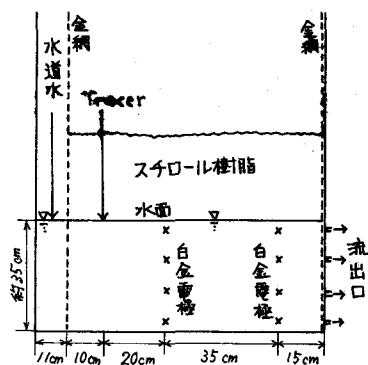


図-1 中央縦断面図

- i) 自然状態の砂と2N-硝酸で洗った砂について、交換容量を土壤学の方面で標準化されている酢酸アンモニウム法で測定した。
- ii) 内径2.9cm、長さ25cmのカラムに砂150gを空隙率約45%で詰め(この時、透水係数は 0.62cm/min である)、溶出液中に Ca^{++} がほとんど認められなくなるまで2N-硝酸を通水して砂が硝酸に侵された状態を作った。このカラムに ^{90}Sr と $^3\text{H}_2\text{O}$ (地下水のTracer)を含んだ地下水を通水し、溶出液中の ^{90}Sr 濃度をGM管で、 $^3\text{H}_2\text{O}$ 濃度を液体scintillation counterで測定し、それぞれの溶出曲線を求めた。
- iii) ^{90}Sr について、自然状態の砂に対しても比較のためカラム実験を行ない、 ^{90}Sr と $^3\text{H}_2\text{O}$ の溶出曲線を求めた。

- iv) ^{137}Cs について、硝酸に侵された砂に対してはii)と同様にカラム実験を行なった。
- v) ^{137}Cs について、自然状態の砂に対してはバッチ実験を行なった。すなわち、ビーカーに砂10gを入れ、 ^{137}Cs を含んだ地下水を100ml加えて時々攪拌し、交換平衡に達した後上澄液中の ^{137}Cs および Ca^{++} 濃度を測定し、Mass action constant $K_{\text{Cs}-\text{Ca}}$ を算出した。

[結果と考察]

〔実験Ⅰ〕の結果、再処理廃水は滯水層に混入後ただちに沈降し、透水層中を不透水層と透水層との境界面に沿って流動することがわかった。

〔実験Ⅱ〕i)の結果を表-1に示す。砂を硝酸で洗うと交換容量が約2割増加した。

ii)の結果を図-2に示す。地下水のTracerである三重水素水の溶出曲線を通水量軸に70倍引き伸ばしたものが ^{90}Sr 溶出曲線と一致することから、 ^{90}Sr は硝酸に侵された滯水層中を地下水流速の1/70倍の速度で移動することがわかる。また ^{90}Sr の娘核の ^{90}Y は普通溶出してこないが、この場合ラジオクロイドを形成して図-2に示すように溶出が認められた。

iii)の結果、 ^{90}Sr は自然状態の滯水層中を地下水流速の1/95倍の速度で移動することがわかった。

iv)では ^{137}Cs が非常によく吸着されてBreak Pointまで至らなかったため、カラム内上部の砂を少量採取して ^{137}Cs の吸着量を調べ、この砂が鋭初に達していることとみなしてMass action constantを算出した結果、 $K_{\text{Cs}-\text{Ca}}=3.27 \times 10^3 \text{ ml/g}$ となった。井上の理論¹⁾によると、放射性核種の移動時間は地下水のTracerの移動時間を K_f 倍したものである。ただし、 K_f はTime transformation factorと呼ばれ、(1)式、 $K_f = 1 + \{(1-f)/f\}PK^{1/2}(800/C_T)^{2/b}$ で表わされる。ここに f は空隙率、 P は密度、 K はMass action constant、 800 は交換容量、 C_T は液中総イオン濃度、 a は放射性イオンAのイオン価、 b は地下水中に主として含まれるイオンBのイオン価を示す。そこで、(1)式より K_f を算出すると $K_f=1400$ となった。すなわち、 ^{137}Cs は硝酸に侵された滯水層中を地下水流速の1/1400倍の速度で移動すると推定される。

v)の結果、 $K_{\text{Cs}-\text{Ca}}=6.10 \times 10^3 \text{ ml/g}$ となり、(1)式より $K_f=1933$ となった。したがって、 ^{137}Cs は自然状態の滯水層中を地下水流速の1/1933倍の速度で移動すると推定される。

以上、〔実験Ⅱ〕の結果を表-1に示す。

[結論]

砂が硝酸に侵されると交換容量が増加するにも関わらず、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs とも地中移動速度は約1/4倍速くなった。 ^{137}Cs の移動速度は非常に遅いが、 ^{90}Sr の移動速度は速く、 ^{137}Cs に比べて約20倍である。したがって、 ^{90}Sr の挙動については十分注意する必要がある。

参考文献1) Inoue, Y., Kaufman, W.J.: Health Phys., 9, 705 (1963)

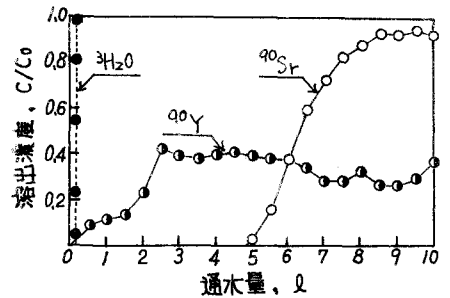


図-2 溶出曲線

表-1	交換容量	^{90}Sr の移動	^{137}Cs の移動
	$800, \text{ meq/100g}$	速度, $1/K_f$	速度, $1/K_f$
2N硝酸で洗った砂	3.76	$\frac{1}{70}$	$\frac{1}{1400}$
自然状態の砂	3.20	$\frac{1}{95}$	$\frac{1}{1933}$