研究

論文

583. 放射性廃棄物地中処分場の立地選定, (Ⅳ) 多核種が共存する場合の放射性核種地中移動

森 澤 真 輔*

(1972年 9月11日 受理)

(1973年 2月7日 再受理)

Selection of a Site for the Ground Disposal of Radioactive Wastes, (Ⅳ)
Migration of Multiple Nuclides under the Ground

By Shinsuke MORISAWA

The migration of single radionuclides disposed of underground have been studied extensively, and many results have been reported. The migration of multiple radionuclides under similar conditions, has, on the other hand, scarcely been studied, and yet it is very important for evaluating the safety of the ground disposal of radioactive wastes.

This paper bases its discussion on two theories (that of frontal analysis proposed by Sillen & Inoue's theory) on the behavior of multiple nuclides. It is shown that frontal analysis is applicable theoretically to the estimation of the migration of multiple radionuclides, but that some difficulties are encountered in its practical use in the field. The difficulties are, for instance, the estimation of the quantities of soil in contact with underground water, and the effect of the diffusion of the nuclides in the underground water. Inoue's theory, on the other hand, well depicts the migration of multiple radionuclides under the ground, but the theory requires field observation of the ground water movement.

KEYWORDS: multiple nuclides, ground disposal, radioactive wastes, Inoue's theory, frontal analysis, ground water, radionuclide migration, safety, site selection

Ⅰ. はじめに

第Ⅰ報⁽¹⁾では、処分した廃棄物中に含まれる放射性核種が地中に漏洩し、最終的に人体に摂取されるに至るプロセスを定式化し、第Ⅱ・Ⅲ報⁽²⁾⁽³⁾では、第Ⅰ報の成果を用いて、おのおの地中処分場の立地条件・計算機による立地選定法を明らかにした。第Ⅰ～Ⅲ報では、放射性核種の地中での移動を記述するのに井上の理論⁽⁴⁾を採用している。井上の理論は、単一の核種が地層を構成する土壌と地下水との間で常に交換平衡の状態にあるとの仮定のもとに、問題となる核種がどのように地中を移動するかを論じている。一般に、問題となる放射性核種が多種類存在しても、各核種の濃度が互いに影響を及ぼし合わないほど低ければ、単一核種についての理論を用いてこれら多核種の挙動を論ず

ることができることは、クロマトグラフの理論などから明らかである。ところが、放射性廃棄物を処分することによって地中に漏出する放射性核種は、決して1種類ではなく、廃棄物中に含まれるすべての核種が漏出すると考えられ、それらの濃度が互いに影響を及ぼし合わないほど低いかどうかは、実験的にはまだ確認されていない。また、核種の地中での挙動は、地下水中に放射性の濃度に比べて多量に存在する無機イオンによっても大きく変化する⁽⁵⁾。したがって、第Ⅰ～Ⅲ報で行なった検討が正当性を有するには、地中処分の場合に問題となる多核種が存在する系に対しても、井上の理論が適用できることを確認しておく必要がある。

* 京都大学 工学部 (Faculty of Eng., Kyoto Univ.)

本報では、廃棄物を地中処分する場合に問題になると考えられる濃度条件下で、多核種がどのように地中を移動するか実験的に検討した。またその結果を、単一核種が存在するとして導かれた井上の理論と、多核種が存在するとして導かれた Sillén の Frontal analysis とを用いて解析し、両理論の適用性を明らかにした。

II. 理 論

1. 井上の理論⁽⁴⁾⁽⁶⁾

一般に、放射性物質の地中での移動を記述する理論は、放射性物質に関する物質保存の(1)式と、放射性物質と土壌との反応速度式とを連立して解くことによって得られる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1-f}{f} \rho \frac{\partial q}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) \\ + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \\ - \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (v_z C) \\ - \lambda \left(C + \frac{1-f}{f} \rho \cdot q \right) \end{aligned} \quad (1)$$

井上は、地下水の流速が極めて遅いことから、地下水の放射性核種と土壌との間にイオン交換平衡が成立するとして、次の反応速度式(2)を用いた。

$$q = k_d \cdot C \quad (2)$$

さらに、放射性核種の自己減衰を無視できる場合について、次の変数変換(3)を施すことにより、(1)式が

$$\frac{t}{T} = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \equiv K_f \quad (3)$$

地下水そのものの移動を表わす運動方程式となることを示した。すなわち、同理論によれば、放射性核種の地中での移動は、地下水の移動を把握し、それを(3)式で与えられる時間縮尺を用いて読み直すことにより把握できる。

この理論は、単一の放射性核種が地下水と土壌との間でイオン交換平衡の状態にあること、すなわち、2イオン間の交換反応を前提として展開されており、したがって、多くの放射性核種の地中移動を把握するには適用することができない。しかしながら、この理論は、水理学的には地下水の流線網が時間的に一定であればどのような系にも適用することができ、他の理論では評価することのできない核種の拡散効果をも評価できるなど、複雑な実地層においても精度よく移動を予測できる数少ない理論の1つとして知られてい

る⁽⁷⁾⁽⁸⁾。さらに、この理論は核燃料再処理廃液のような水素イオン濃度の高い廃液の地中移動⁽⁹⁾、および通気層での核種の移動⁽¹⁰⁾を把握する場合にも適用できることが実験的に確かめられている。

2. Frontal Analysis

Sillén⁽¹¹⁾は物質保存式として(4)式を用いた。

$$\left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)_v + \left(\frac{\partial q}{\partial V} \right)_s = 0 \quad (4)$$

(4)式は、(1)式において核種の減衰項、拡散項を無視して、式を1次元化することによって得られる。さらに Sillén は、土壌と地下水中に存在する多くのイオンとの間に常にイオン交換平衡が成立することを仮定し、反応速度式に代わるものとしてこれらイオンの平衡曲線を用いた。すなわち、Frontal analysis では井上の理論と異なり、(2)式で与えられるような一定の関係を前提としておらず、(2)式の分配係数 k_d が核種の濃度により変化するとの立場をとっている。Frontal analysis による核種移動の理論値は、問題とするイオンの交換平衡曲線から簡単な手順により図解的に求められる。しかしながら、本理論では核種移動の理論値を簡単に得ることはできるが、理論の展開において多くの仮定を採用しているため、得られた理論濃度曲線が不連続に変化する場合があるなど、改良すべき点が多く残されている。同理論は、イオン交換樹脂塔での核種の溶出曲線のような理想的条件下での核種の移動をよく説明するが、実地層での核種の移動を予測する場合には、理論の適用について解決すべき問題がある。

III. 実 験

内径25mmのガラス製円筒に土壌を充填し、半減期が長く保健物理学上重要な核種である Co, Sr, Cs を混合した模擬地下水を通水して、各核種の溶出曲線を求めた。Cs はコンクリート固化体からの溶出速度が大きく⁽¹²⁾、Sr は放射性廃棄物を地中に処分した場合の決定核種となる場合が多い⁽¹³⁾。また、Co はコンクリート固化体からの溶出速度は小さいが⁽¹²⁾、一度地中に漏出すると比較的速く移動する^{(14)*}。用いた核種の化学形は、いずれも塩化物(無担体)である。放射性廃棄物を地中に処分した場合、例えば地中処分場から地

* 放射性廃棄物地中処分の安全性を考える際に重要な核種としては、このほかに、イオンとして存在しない場合の^{110m}Agがある⁽¹⁵⁾。イオンとして存在しない核種の地中移動については、本報で述べる理論では取り扱えないので、別の機会に検討する。

地下水流の主方向下流側 300m での放射性核種の地下水中濃度は、 ^{90}Sr が $7.95 \times 10^{-13} \mu\text{Ci/ml}$, ^{60}Co が $1.99 \times 10^{-85} \mu\text{Ci/ml}$, ^{137}Cs が $2.18 \times 10^{-56} \mu\text{Ci/ml}$ であると推定されている⁽¹⁾。この濃度は、地中処分場に近づくほど大きくなるが、本報で採用した放射性核種の濃

度 (Table 2 参照) は、これらの推定濃度よりも充分に大きい。したがって、地中処分場のごく近くを除けば、放射性核種の地下水中濃度が、本報の実験条件として採用した濃度よりも大きくなることはないと考えられる。

Table 1 Quality of the simulated ground water (tap water) used in this work

Element	Concentration (meq/l)	Element	Concentration (meq/l)	Element	Concentration (ppm)
Ca^{++}	1.08	F^-	0.01	P-alkalinity	—
Mg^{++}	0.58	NO_3^-	0.03	Total SiO_2	6.50
Na^+	0.60	CO_3^{--}	—	Total Fe	0.1
K^+	0.03	SO_4^{--}	0.61	Total Zn	0.9
Total cation	(2.29)	Total ionic anion	(2.27)	Total Mn	—
HCO_3^-	0.80	Total hardness	1.66	pH (at 10°C)	7.8
Cl^-	0.82	M-alkalinity	0.80		

Table 2 Chemical form and concentration of radionuclides used in this work

Nuclide	Chemical form†	Concentration in an original solution ($\mu\text{Ci/ml}$)
^{60}Co	CoCl_2 in HCl soln.	7.66×10^{-3}
^{90}Sr	SrCl_2 in HCl soln.	3.66×10^{-3}
^{137}Cs	CsCl in HCl soln.	1.21×10^{-2}

Note: Each nuclide was used in carrier free.

† Presented by the Japan Radio-isotope Association.

実験には模擬地下水として、Ca 濃度, Mg 濃度, M-アルカリ度, pH など実際の地下水とその水質が類似している水道水を用いた。模擬地下水は水温 10.0 °C, pH 7.8, 総硬度 1.66 meq/l, M-アルカリ度 0.80 meq/l (Table 1 参照), 飽和指数*は -0.63 (10.0°C) で, Table 2 の放射性核種を含んでいる。実験に用いた土壌は、某原子力発電所敷地内から採取した、主としてケイ砂からなる細砂である。その密度は気乾状態で 2.49 g/cm^3 , 有効径は 0.014 mm, 均等係数は 11 で, 標準酢酸アンモニウム法および ^{45}Ca を用いて測定した陽イオン交換容量はおおの 24.3, 18.3 $\mu\text{eq/g}$ である。ガラス円筒に充填した土壌は 10.0 g, 土壌床の高さは 19 mm, 空隙率は 48.4%, 模擬地下水の通水速度は $1.70 \text{ ml/cm}^2 \cdot \text{min}$ である。ガラス円筒の流出液を一定時間毎にサンプリングし, 400 チャネル波高分析器で γ 線放射能を, 2π ガスフロー・カウンタで β 線放射能をおおの計測し, γ 線エネルギーの分布から ^{90}Co , ^{137}Cs の濃度を決定し, 全 β 線放射能計数率からこれ

らの核種の寄与分を除いて ^{90}Sr の濃度とした。

前述の理論を用いて, 多核種が共存する場合の各核種の溶出曲線を解析するに必要な定数を得るために, さらに 2 組の実験 (予備実験) を行なった。その 1 つは, 井上の理論を適用する場合に必要な各核種の分配係数値を求めるカラム実験である。模擬地下水として水道水を用い, また前述の実験に用いたのと同じ土壌を用い, 単一核種 (塩化物・無担体) を混合した模擬地下水を通水して核種の溶出曲線を求め, (3) 式によって分配係数値を計算した。模擬地下水の通水速度, 総硬度, pH, 核種濃度などの実験条件を Table 3 に示す。他の 1 つは, Frontal analysis を適用する場合に必要な, 各核種の交換平衡曲線を求めるバッチ実験である。地下水中に存在する無機陽イオンとしては H^+ , Na^+ , Mg^{++} , Ca^{++} などがあるが, 通常はイオン価数が大きいほど強く土に交換吸着される。ここではイオン価数が大きく, 地下水中に多量に存在し, 放射性核種の土壌への交換吸着現象を考える場合に重要な役割を果たすと考えられる安定元素として Ca を採用した⁽²⁾。1N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ を用いて Ca 型に調整した土壌の一定量をビーカにとり, 単一核種 (塩化物, 無担体) を含む模擬地下水**を加えてよく攪拌した後, 約 24 hr 放置し

* 飽和指数は, 炭酸カルシウムの溶解・沈殿反応がいずれの向きに進行するかを示す指標である。飽和指数が, 正であれば地下水中の Ca イオンが沈殿し, 負であれば土壌中の炭酸カルシウムが溶解する⁽¹⁴⁾。

** 核種濃度, 総硬度などの実験条件は, 分配係数値を求めるカラム実験の場合と同じである。

Table 3 Experimental conditions and distribution factors

Nuclide	Soil-bed			Influent solution					Distn. factor k_d (ml/g)
	Height (mm)	Weight (g)	Porosity (%)	Hardness (meq/l)	pH	Sat. index ⁽¹⁴⁾	Activity ($\mu\text{Ci/ml}$)	Elution rate (ml/cm ² ·min)	
⁶⁰ Co	16	10.0	36.3	1.93	8.1	0.23	3.0×10^{-2}	2.31	18.8
⁸⁹ Sr	15	22.4	37.1	—	—	—	2.9×10^{-3}	2.93	6.7
¹³⁷ Cs	18	10.0	43.4	2.47	7.6	-0.12	6.4×10^{-3}	2.28	409.4

Note: Each nuclide was used in carrier free.

上澄液中の核種濃度を測定して、各核種の質量作用の法則による平衡定数を求めた。

IV. 実験結果

⁶⁰Co, ⁸⁹Sr, ¹³⁷Cs を混合した模擬地下水をカラムに通水して求めた各核種の溶出曲線を Fig. 1 に示す。Cl イオンをトレーサとして測定した地下水の溶出曲線を Fig. 1 にあわせて示す。

Fig. 1 Elution curves of ⁶⁰Co, ⁸⁹Sr and ¹³⁷Cs from soil (Each nuclide was used in carrier free and in the chemical form of a chloride)

単一核種を含む模擬地下水をカラムに通水して溶出曲線を得、(3)式で計算した各核種の分配係数値を Table 3 に示す。井上の理論によると、(3)式の K_f したがって分配係数値 k_d が小さい核種ほど速く地中を移動するから、放射性核種の地中での移動速度は $^{89}\text{Sr} > ^{60}\text{Co} > ^{137}\text{Cs}$ となることがわかる。

パッチ実験によって求めた質量作用の法則による各核種の Ca に関する交換平衡定数は、おのおの $K_{\text{Ca-Co}} = 30.1$, $K_{\text{Ca-Sr}} = 2.72$, $K_{\text{Ca-Cs}} = 1.5 \times 10^5 \text{ g/ml}$ であった。これらの値を用いて計算した各核種の平衡曲線を Fig. 2 に示す。Frontal analysis によれば、平衡曲線の原点における勾配が小さい核種ほど速く地中を移動するから、やはり核種の地中での移動速度の大きさでは $^{89}\text{Sr} > ^{60}\text{Co} > ^{137}\text{Cs}$ となることがわかる。

Fig. 2 Equilibrium curves

V. 考察

⁶⁰Co のみを含む模擬地下水を用いて行なったカラム実験で得た ⁶⁰Co の分配係数値は 18.8 ml/g であり (Table 3 参照), Fig. 1 の溶出曲線を得た実験の実験条件は、空隙率が 0.484, 土壌密度が 2.49 g/cm³ である。したがって、(3)式で与えられる時間変換係数 K_f は、⁶⁰Co について

$$K_{f,\text{Co}} = 1 + \frac{1-0.484}{0.484} \cdot (2.49)(18.8) = 50.9$$

となる。同様に ⁸⁹Sr については $K_{f,\text{Sr}} = 18.8$, ¹³⁷Cs については $K_{f,\text{Cs}} = 1,086$ である。ゆえに、井上の理論によれば、これらの核種の理論溶出曲線は、個々の核種の土壌との交換吸着反応が他の核種とは全く独立に起ると仮定すれば、水のトレーサとして用いた Cl イオンの溶出曲線 (Fig. 1) をおのおの 50.9 倍, 18.8 倍, 1,086 倍することによって得ることができる。得られた理論溶出曲線を実測値と共に Fig. 3(b) に示す。理論溶出曲線は実測値をよく説明している。このことは、放射性廃棄物の地中処分に関して多核種の地中移動を論ずる場合には、核種の地下水中的濃度は、おのおの核種が独立に土壌と交換吸着するとみなせるほど

Fig. 3 Comparison between observed and predicted values

低く、したがって、井上の理論を用いて多核種の地中移動を論ずることが妥当であることを意味する。井上の理論による核種の理論溶出曲線は、同じカラムを用いて測定した地下水の溶出曲線を、通水量(時間)軸方向に K_f 倍することによって得られる。ゆえに、井上の理論を用いて実地層での放射性核種の移動を予測するには、現地での地下水流動調査、ボーリング調査または数値計算などにより、地下水の移動状況を予め把握する必要がある。同理論は、実験室で得た成果を実地層にスケールアップして適用する場合に理論的な問題がなく、この点で Frontal analysis に優る。

Fig. 2 の交換平衡曲線を用いて、Frontal analysis を適用して得た各核種の理論溶出曲線を実測値と共に Fig. 3(a) に示す。ただし同図には、縮尺の関係から ^{137}Cs の理論溶出曲線は描かれていない。Frontal analysis によれば、例えば ^{60}Co の理論溶出曲線は不連続になる。これは ^{60}Co の土壌による交換吸着能が、 ^{89}Sr の交換吸着能に優ることから得られる同理論の一般結論の1つである。しかしながら、 ^{60}Co の理論溶出曲線は、実測値の平均的な溶出位置を比較的良好に説明している。Frontal analysis による核種の理論溶出曲線は、パッチ実験によって求めた交換平衡定数から平衡曲線を得、さらに簡単な作図を行うことにより図解的に得られた。すなわち、本理論による理論溶出曲線は、地下水と土壌と核種とによって定まる物理化学量のみから定まり、井上の理論を適用する場合に必要であった地下水の溶出曲線を必要としない。ゆえに、Frontal analysis によって実地層での核種の移動を予測するには、現地での野外調査によって地下水の移動状況を把握する必要はない。ただし、放射性核種を含む地下水が、人間の生活環境に流出するまでに

接触する土壌の量を算定する必要がある*。

Ⅶ. おわりに

放射性廃棄物地中処分場の立地選定を安全性を確保する立場から行うには、地中に処分された廃棄物から漏出した核種が地中でどのように移動するかを把握する必要がある。第Ⅰ～Ⅲ報では、多核種が共存する場合にも、単一核種が存在するとして導かれた井上の理論を用いてきた。本報により、廃棄物の地中処分を検討する場合に問題になると考えられる核種の濃度条件下では、各核種が全く独立に土壌と交換平衡に達するとみなして、井上の理論を適用することが妥当であることを、実験的に示すことができた。

Frontal analysis を用いて実地層での核種の移動を予測するには、核種の地下水中での拡散効果の評価、地下水の接触する土壌量の算定など、なお解決すべき問題が残されている。

本研究を実施するに当たり、京都大学工学部井上頼輝教授より多大なご指導を賜った。ここに深く感謝いたします。

〔記号〕

- C: 放射性核種の地下水中での濃度
- q: 放射性核種の土壌中での濃度
- V: 地下水の累積流量 (Frontal analysis)
- x: 放射性核種との交換に用いられる土壌量

* 例えばボーリング調査においては、井上の理論では地下水位を測定することが主目的になり、Frontal analysis では帯水層の厚さを測定することが主目的になると考えられる。

(Frontal analysis)

D_x, D_y, D_z : おのおの x, y, z 方向の拡散係数

v_x, v_y, v_z : おのおの x, y, z 方向の地下水流速

f : 地層の空隙率

ρ : 土壌の密度

k_d : 放射性核種の土壌と地下水との間の分配係数

λ : 放射性核種の崩壊定数

K_f : 時間変換係数

T : 放射性核種の移動を測る時間スケール

t : 地下水の移動を測る時間スケール

— 参 考 文 献 —

- (1) 井上頼輝, 森澤真輔: 放射性廃棄物地中処分場の立地選定, (I), 本誌, 14[10], 522~530 (1972).
- (2) 同 上: ———, (II), 同 上, 14[12], 652~660 (1972).
- (3) 同 上: ———, (III), 同 上, 15[2], 126~135 (1973).
- (4) 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, (1970).
- (5) 井上頼輝, 森澤真輔: 放射性核種の分配係数値の変化について, 保物協第7回研究発表会予稿集, p. 37 (1972).
- (6) INOUE, Y., KAUFMAN, W.J.: Prediction of

movement of radionuclides in solution through porous media, *Health Phys.*, 9, 705~715 (1963).

- (7) CLEBSCH, A. Jr., BALTZ, E.H.: Progress in the United States of America toward deep-well disposal of liquid and gaseous radioactive wastes, *Proc. Symp.*, Vienna, IAEA/ENEA, pp. 591~605 (1967).
- (8) IAEA: *Radioactive Waste Disposal into the Ground*, IAEA Safety Ser. No. 15, pp. 72~75 (1965).
- (9) 岩井重久, 井上頼輝, 西牧研社: 再処理廃液中核種の地下移動, 本誌, 10[8], 435~440 (1968).
- (10) 井上頼輝, 赤木文行: 地下通気層における放射性核種の挙動について, 土木学会第26回年次学術講演会講演集 II-228, pp. 633~634 (1971).
- (11) SILLÉN, L.G.: On filtration through a solvent layer, *Ark. Kem.*, 2[34], 477~512 (1950).
- (12) 寺島 泰: 放射性廃棄物固化体中の放射性核種の溶出に関する研究, 保健物理, 6[3], 123~129 (1971).
- (13) 原安協: 固体廃棄物処理処分専門委員会昭46年度報告書, (1972).
- (14) FAIR, G.M., GAYER, J.C.: "Water Supply and Waste Water Disposal", (1956), John Wiley and Sons.

欠 本 求 む

本「会誌」バックナンバーで次のものが欠本になりました。

「和文誌」 Vol. 14, No. 9

ご不要の向きがありましたら, 1冊でも結構ですから, 定価(¥250)でお引き取りしますので, 8月末までに事務局宛ご送付願います。

◎本会誌 バックナンバー◎

会員は2割引で入手できる

バックナンバーはこのたび古いバックナンバーを大整理しましたので, 創刊以来のコンプリートセットは数部だけになりました。

会員には定価の2割引で頒布しますので, お早くお申し込み下さい。