615. 通気層における放射性核種の移動, (I)

パーコレートする液に含まれる核種の移動

井上頼輝*, 森澤眞輔*, 馬原保典*

(1975年 1月13日 受理)

Radionuclide Migration in Aerated Zones, (I)

Migration Characteristics of Nuclides Contained in Percolating Water

By Yoriteru INOUE, Shinsuke MORISAWA and Yasunori MAHARA

If it is desired to evaluate the potential hazard caused by radioactive wastes buried in the ground, it is necessary to know how radionuclides would migrate through soil especially through aerated zones. However, the rate of underground migration of nuclides has so far been studied far less extensively in aerated zones than in saturated zones, on account of many difficulties underlying such studies.

The present paper covers an experimental study based on a model stratum, aimed at obtaining information on phenomena occurring in an aerated zone. Some significant results have been obtained, such as that: (1) The concept of time-transformation factor (K_f -factor) is useful in the present circumstances for evaluating the migration of nuclides in aerated zones, (2) radionuclides would be retained in an aerated zone at least as effectively as in a saturated zone, and (3) the movement of ^{90}Sr in an aerated zone could be predicted from the observed behavior of ^{90}Y , which is a daughter of ^{90}Sr , because ^{90}Y migrates faster than ^{90}Sr .

KEYWORDS: radioactive wastes, waste disposal, underground disposal, radionuclide migration, aerated zone, strontium 90, yttrium 90, migration rate, hazard evaluation, soils

I. はじめに

放射性廃液がなんらかの事故によって地中に漏出したり、あるいは放射性廃棄物を地中に処分したりする場合には、地中に漏出した放射性物質によって人間がどの程度の影響を受けるかを的確に予測する必要がある。放射性核種の帯水層(地下水層)中での移動については比較的研究が進んでおり、現在すでに定量的に核種の移動を評価できる段階にある。しかしながら、通常、放射性廃棄物を保管あるいは処分するための地層として選ばれる通気層における放射性核種の移動については、同地層内での水分移動の定量化がきわめて難しいこともあり、ほとんど研究が進んでいない。それゆえ、一般的には地中処分法の安全性を向上させる

のに非常に重要な役割を果たすと考えられているにもかかわらず、従来の安全性評価においては通気層が核種を保持固定する効果が全く無視されてきたといっても過言ではない。

本研究は放射性核種の通気層内での移動特性を実験的に検討し、通気層のもつ核種の保持固定能を正しく評価するための知見を得ることを目的としている。この目的を達成するために、放射性核種を含む廃液が地表面から地中に浸透する場合を想定して、放射性廃液が漏出する場合の安全性を評価する上で重要であると思われる⁽¹⁾ ^{90}Sr および ^{90}Co を含む模擬廃液をモデル地

* 京都大学工学部(Fac. of Eng., Kyoto Univ.)

層に通水し、これらの核種がどのような挙動を示すかを検討する実験を行なった。

II. 実験

1. 実験装置の概要

実験に用いた通気層模型実験装置を Fig. 1 に示す。装置は肉厚 1 cm、直径 50 cm、高さ 30 cm のアクリル製フランジ管を任意の段数積み重ねることによって構成される。本研究では 5 段積みとした。実験装置の上部には長さ 40 cm のスプリンクラーが取り付けられており、核種を含む水道水を雨滴状に供給することができる。スプリンクラーへの水道水の供給には 2 連式の定流量ポンプを用いた。スプリンクラーの回転周期と定流量ポンプの吐出周期との間には位相のズレがあるため、給水時間を長くすることによって時間的にほぼ一様な給水を行うことができる。ただしスプリンクラーには等間隔 (1 cm) に細孔を穿っているため通気層への給水量には、地層中心から半径方向に Fig. 2 に示すような分布がある。各フランジ管には地層内温度測定用の測温抵抗体の挿入口、試料砂採取口が設けられて

Fig. 1 Experimental apparatus for testing migration of radionuclides in aerated zone

Fig. 2 Feed rate distribution of solution into model aerated zone

おり、試料砂採取口からは 1 回当たり 0.1~10 g の充填砂を採取することができる。

Fig. 1 の実験装置に、日本原子力研究所東海研究所構内において採取した主としてケイ砂からなる粗砂 (密度 2.67 g/cm^3 , 有効径 0.51 mm , 均等係数 2.0, 酢酸アンモニウム法による陽イオン交換容量 $9.44 \text{ } \mu\text{eq/g}$) 約 430 kg を高さ 138 cm, 平均空隙率 41.7% になるように充填した。砂層の下部には排水を良好にするために礫を厚さ 5 cm に敷きつめてあるので地層底部に地層浸透水が帯水して地下水面を形成することはない。したがって、本通気層模型は地下水位が十分に深い場合の現実の地層を模している。実験開始前の通気層の飽和度*は地層表面から深さ 8.4 cm の位置で 8.0%, 37.4 cm の位置で 10.8%, 67.4 cm の位置で 13.3% であり、深さと共にやや増加する傾向にある。地層の飽和透水係数は約 $1.1 \times 10^{-1} \text{ cm/sec}$ ($3.9 \times 10^2 \text{ cm/hr}$) である。

Table 1 に示す水質の水道水に ^{90}Sr , ^{60}Co および三重水素水 (HTO) を混入して模擬廃液とした。 ^{90}Sr , ^{60}Co は無担体 (塩化物) で用いた。HTO は地層内の水の拡散状態を調べるために使用した。模擬廃液を 4 区分に分画し、第 2 区分には HTO を混入しないものを用いた。これは後に述べるように、飽和度が上昇する場合の水の拡散現象と飽和度一定の場合の水の拡散現象とを比較することを目的にしている。各区分の核種濃度を Table 2 に示す。 ^{90}Sr , ^{60}Co の濃度は区分によらずほぼ一定である。模擬廃液の給水総量は 204 l, 通気層からの排水総量は約 199 l, 給水継続時間は約 14 hr である。給水開始 12 hr 後に給水速度が減少するまでの断面平均給水速度は $8.07 \text{ cm}^3/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$, 浸透水の平均間隙流速は 59.3 cm/hr , 一方給水開始 12 hr 後より給水停止までの平均給水速度は $7.40 \text{ cm}^3/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$

* 地層の間隙容積中に占める土壌水分の割合。容積比または容積百分率で表示する。

Table 1 Chemical analysis of water used for feed solution

Component	Concentration	Component	Concentration
	(meq/l)		(meq/l)
Ca ⁺⁺	1.00	Total ionic	(2.48)
Mg ⁺⁺	0.53	anion	
Na ⁺	0.90	Total Hardness	1.53
K ⁺	0.03	M-alkalinity	1.04
Total cation	(2.46)		(ppm)
HCO ₃ ⁻	1.04	P-alkalinity	0
Cl ⁻	0.80	Total Fe	0.1
F ⁻	0.01	Total Zn	0.9
NO ₃ ⁻	0.03	Total Mn	0
CO ₃ ⁻	0	Total Pb	0
SO ₄ ⁻	0.60	pH (15C)	7.1

Table 2 Concentration of radionuclides in each part of feed solution

Part†	Volume (l)	Cumulative volume (l)	Concentration of nuclide†† (μCi/ml)		
			HTO	⁹⁰ Sr	⁶⁰ Co
1st	51	51	1.4×10 ⁻²	2.2×10 ⁻³	1.6×10 ⁻³
2nd	51	102	0	2.3×10 ⁻³	1.4×10 ⁻³
3rd	51	153	1.4×10 ⁻²	2.4×10 ⁻³	1.5×10 ⁻³
4th	51	204	1.4×10 ⁻²	2.0×10 ⁻³	1.7×10 ⁻³
Mean	51			2.2×10 ⁻³	1.6×10 ⁻³

† The parts of feed solution were supplied to the model aerated zone in this order.

†† All nuclides used were carrier-free.

である。実験経過を整理して **Table 3** に示す。採用した実験条件下では、廃液の給水速度に比べて地層の透水係数が充分に大きいため、地層表面に廃液が湛水することはない。地層内での水分移動は、水分の拡散現象に比べて浸透現象によるものが卓越するものと思われる。また実験条件下においては廃液を連続的に給水するため、土壌水分の分配に関してヒステリシス現象は考慮しなくてよいものと考えられる。

2. 地層内飽和度の変化

Table 3 Chronological progress of experiment

Time elapsed (hr) after:		Feed rate (cm ³ /cm ² ·hr)	Volume of Solution (l)		Operation
Feeding	Draining		Influent	Effluent	
0.00		8.07			Feeding started (1st part)
2.08	0.00	8.07	32.85	0.00	Draining started
3.25	1.18	8.07	51.45	17.87	Feeding started (2nd part)
6.47	4.39	8.07	102.37	69.53	Feeding started (3rd part)
9.70	7.63	8.07	153.68	120.73	Feeding started (4th part)
12.07	9.99	3.34	191.07	159.90	Feed rate decreased
14.04	11.97	3.34	204.00	180.97	Feeding stopped

通気層の特徴は、帯水層のように地層間隙が水で飽和されているのではなく、給水速度や給水継続時間によって飽和度が変化することにあるといえる。通気層での核種の移動について検討する場合には、地層内の空隙がどの程度水で飽和されているか(飽和度)、また廃液の浸透とともに飽和度がどのように変化し、それが核種の移動にどのような影響を及ぼすかを把握する必要がある。廃液の浸透現象を乱さずしかも連続的に通気層の飽和度を測定・記録するために、微小変位計に記録計を接続して実験に使用した。微小変位計は、アクリル製フランジ管の外壁に1組(2枚)の電極を貼り付け、廃液が浸透することによって変化する地層の飽和度の変化を電極間の静電容量の変化として読み取る計器である。電極は厚さ3mmの銅板を用いて長方形、正方形、円形等種々の形状・寸法のものを試作し、微小変位計の測定感度を良好にするものを選んだ。実験に用いた電極の寸法と取付位置を **Table 4** に示す。

微小変位計による飽和度測定に必要な検定曲線は、一定速度で水道水を地層に供給し、微小変位計の読みが平衡した後、試料砂採取孔から土砂を採取し、乾燥器(110°C)で乾燥し、乾燥時・湿潤時の重量の差から飽和度を算出することによって作製した。検定曲線の1

Table 4 Arrangement and dimensions of electrode pairs designed and used for detecting moisture content (degree of saturation) of stratum

Station No.	Position† (cm)	Distance between electrode pairs (cm)	Dimensions of electrodes (cm)	
			Height	Width
A	8.4	10.1	1.45	0.70
			1.60	0.70
B	37.4	10.7	2.20	0.40
			2.20	0.45
C	67.4	11.0	1.50	1.50
			0.70	0.65

† Distance from the surface of the sand layer

例(Station A)を Fig. 3 に示す。飽和度を測定する本方法は測定対象の地層を物理的に乱さない利点を有するが、一方、後で述べるように地層浸透水の水質が大きく変化する場合にはそれに応じて測定誤差が大きくなる欠点を有している。

The degree of saturation is defined as the volume ratio between soil moisture and void in the stratum.

Fig. 3 Calibration curve of instrument for measuring degree of saturation at Station A

3. 地層内温度の変化

実験中の温度変化を測定するために、測温抵抗体と打点式記録計とを使用した。地層内の5箇所および地層外の気温(室温)1箇所、合計6箇所の温度をおおの30secごとに自動的に測定・記録した。

4. 地層内での水の拡散

地層内での水の拡散状態を調べるために、地層に供給する廃液にHTOを混入し、地層流出液中のHTO濃度を測定した。地層の飽和度が増加するときの水の拡散状態、地層の飽和度がほぼ一定のときの水の拡散状態を調べるため、廃液を4区分し、第2区分にはHTOを混入しなかった(Table 2 参照)。

5. 放射性核種の地層内分布

地層からの流出液を一定時間ごとに採取し、液体シンチレーションカウンタでHTO濃度を、 γ 線波高分析器で γ 放射能を、 2π ガスフローカウンタで β 放射能を測定した。 γ 線のエネルギースペクトルから ^{60}Co 濃度を決定し、全 β 線放射能から ^{60}Co の β 線放射能寄与分を差し引いて $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ 濃度を決定し、さらに放射平衡時の β 放射能を測定して ^{90}Sr と ^{90}Y とを分離した。給・排水終了後に地層模型を分解して任意の位置から試料砂を採取し、これに1NHCl溶液を加えて ^{60}Co , ^{90}Sr を溶離させた後、 β , γ 放射能を測定して上

述の方法でおおのこの核種濃度を測定し、ついで ^{60}Co , ^{90}Sr の地層内分布を推定した。 ^{60}Co , ^{90}Sr の1NHCl溶液による溶離率はおおのこの96.2, 94.7%であった。

なお実験に際しては、地層流出液について、放射性核種の地層内での移動に重要な影響を及ぼすと考えられる水質因子である。Ca+Mg濃度、M-アルカリ度、pH値を測定した。地層に供給した廃液が土砂と接触すると浸透水の水質が変化する。特に、放射性核種の地層内での移動について検討する場合には、Ca+Mg濃度の変化に注意する必要がある。放射性核種の分配係数値は浸透水の水質が変化することにより大きく変化するからである。

III. 実験結果

1. 温度分布およびCa+Mgの溶出

実験継続中の温度は、気温が20°~30°C、地層の温度が12°~20°C、また水温は15°~20°Cの範囲で変動した。

地層流出液中のCa+Mg濃度およびpH値の変化をFig. 4に示す。地層流入液のCa+Mg濃度は1.53 meq/lである(Table 1 参照)から、地層内のCa, Mgが浸透水によって溶離され、その濃度が浸透前面で特に大きいことがわかる。液中のCa+Mg濃度が増加すると一般に ^{90}Sr , ^{60}Co の分配係数値は減少するため、これらの核種の地層中での移動速度は促進されることになる。 ^{90}Sr の分配係数値がCa+Mg濃度によって変化する様子をパッチ法により求めてFig. 5に示す。

2. 飽和度の変化

実験開始後の地層の飽和度の変化の様子を、Station A(地層表面より深さ8.4cm)についてFig. 6に示す。実験開始後約2hrで地層から浸透水が排出し始め、約12hr後には廃液の供給速度が減少し*(この時までの廃液の平均供給速度は8.07cm³/cm²・hr)、約14hr後には廃液の供給を停止した。Fig. 6をみると、地層の飽和度は廃液の供給開始後急速に大きくなり平衡値に達することがわかる。このことは、廃液の供給速度が一定でかつ供給継続時間が長い場合には、近似的に地層の飽和度が給水速度に応じた一定値をとるとみなしうることを示している。地層の飽和度は平衡値に達する前に凸部を示す(Fig. 6 参照)が、この凸部の出現時刻と前述のCa+Mg濃度の高い浸透水の浸透前面の到達時刻とがほぼ等しいことから、この飽和度変化の凸部は飽和度の特異な変化を表しているのではなく、Ca+Mg濃度の増加による飽和度測定用電極間

* スプリンクラーの目づまりが原因である。

Fig. 4 Variation of pH-value and Ca+Mg concentration in effluent from model stratum

Fig. 5 Variation of distribution factor in reference to concentration of Ca+Mg

の静電容量の変化を表わしているものと思われる*。

地層への廃液の供給速度と地層の平衡飽和度との間には一定の関係があると思われる。Fig. 7は実験に使用した給水速度付近での廃液供給速度と平衡飽和度との関係を図示したものである。供給速度を次第に大きくして地層表面に湛水するような実験条件を採用すると地層の飽和度はほぼ90%に達する⁽²⁾。実験開始前の地層の飽和度は8%(Station A)である。廃液の供給開始前・後および供給中の地層飽和度の深さ方向の変化をFig. 8に示す。同図より深さが増加するにつれて飽和度も増加することがわかる。

3. 地層内での水の拡散

地層流出液中の HTO 濃度の変化をFig. 9に示す。

Fig. 6 Variation of degree of saturation as function of time at soil moisture detecting Station A (8.4 cm deep in sand layer, cf. Table 4)

* 本方法によって飽和度を測定する場合には避けることのできない問題である。この誤差を定量的に補正するためには、間隙水の浸透前面における

Ca+Mg 濃度を予測する必要がある。この誤差は比較的短時間で無視できるようになるので、本研究では問題ではない。

Fig. 7 Relationship between degree of equilibrium saturation of stratum and solution feed rate

ここでは HTO を水のトレーサーとして用いている。地層からの流出流量が 0 l から始まる HTO 濃度の上昇は地層の飽和度が変化しつつある状態であるのに対し、流出流量が 100 l 付近から始まる HTO 濃度の上昇は地層の飽和度が一定の場合である。両者は互いに流出流量軸方向に平行移動することによって重ね合わせることができる。一方、流出流量が 50 l 付近から始まる HTO 濃度の減少は、これを反転して平行移動することによって前述の 2 つの曲線に重ね合わせることができる。したがって、おのおの条件の異なる 3 つの場合の水の拡散係数は実験精度の範囲内においてほぼ等しいことになる。すなわち、① 飽和度を变化(増加)させながら水が浸透する場合の拡散係数、② ①の場合の平衡飽和度に等しい一定な飽和度のもとで、例えば

Fig. 8 Variation of degree of saturation as function of depth in sand layer

放射性廃液が非放射性的の雨水等で洗浄される場合の拡散係数、③ 逆に非放射性的の雨水等の中へ放射性廃液が浸透する場合の拡散係数は、おのおのほぼ等しいと考えることができる。

拡散係数および浸透流速が一定とみなせる場合の 1 次元輸送拡散方程式の解は次式で与えられる。

$$C/C_0 = \frac{1}{2} [1 - \operatorname{erf} \{(L - vt)/2\sqrt{Dt}\}] \quad (1)$$

ここに、 C ：地層流出液中の HTO 濃度

C_0 ：地層流入液中の HTO 濃度

L ：地層の長さ

v ：浸透水の間隙平均流速

D ：拡散係数

t ：時間

erf ：誤差関数

(1) 式を横軸に t 、縦軸に C/C_0 をとって正規確率紙上にプロットすると $t = L/v$, $C/C_0 = 0.5$ を通る直線となる。したがって、浸透水の間隙流速および拡散係数

Fig. 9 Breakthrough curve of HTO

を一定, かつ地層内で生ずる拡散現象は1次元であるとみなして, Fig.9の HTO 流出曲線を確率紙上にプロットしなおせば (Fig.9 挿図参照) 得られる直線の勾配から水の拡散係数値を得ることができる。このようにして求めた Fick の拡散係数値は $D=1.5 \times 10^{-2} \text{cm}^2/\text{sec}$, また拡散係数が流速に比例する ($D=D_m|v|$)⁽³⁾ として求めた標準拡散係数 D_m は $D_m=9.2 \times 10^{-1} \text{cm}$ となる。ただし浸透水の流速 v としては, 廃液の供給速度 ($8.07 \text{ ml}/\text{cm}^2 \cdot \text{hr}$) を地層の空隙率 (0.417) と飽和度 (0.325) で除した値 $1.65 \times 10^{-2} \text{cm}/\text{sec}$ を用いた。

4. 放射性核種の地層内分布

(1) ^{90}Y の溶出

地層流出液中には γ 放射能 (^{60}Co) は検出されず, 検出された β 線放射能も2週間後には検出されなくなった。このことから地層流出液中に存在した核種が ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y であることがわかる。 ^{90}Y の地層流出液中濃度の変化を Fig.10 に示す。 ^{90}Sr , ^{60}Co は模型地層の下端にまで達しておらず地層内に保持されているものと思われる。このことは ^{90}Y の地層内での移動が ^{90}Sr , ^{60}Co の移動に先行することを示している。したがって, ^{90}Y の流出が検出されればその後遅れてこれらの核種が流出することになる。放射性核種の通気層での移動をモニタする場合には, ^{90}Y のこの性質を有効に利用することができよう。

Fig. 10 Breakthrough curve of ^{90}Y

(2) ^{90}Sr の地層内分布

地層内の各位置における土砂中の ^{90}Sr 濃度から推定した ^{90}Sr の地層内断面分布を Fig. 11 に示す。地層内における ^{90}Sr の分布は地層の中心軸に関してほぼ軸対称であり, 中心軸に近いほど濃度が大きくなっている。これは, 地層模型と地層への廃液の供給が軸対称であることおよび中心軸に近いほど廃液の供給量が多いこと (Fig. 2 参照) を反映したものと思われる。

廃液の浸透速度が地層間隙の断面平均値 $59.3 \text{ cm}/\text{hr}$

The unit of concentration used is $\mu\text{Ci}/\text{g}$ of dry sand.

Fig. 11 Concentration profile of ^{90}Sr along longitudinal section of model stratum.

にはほぼ等しいと思われる位置, すなわち地層の中心軸から半径方向に10cm離れた位置での ^{90}Sr の深さ方向の変化を Fig. 12 に示す。ただし, 同図では土砂中の ^{90}Sr 濃度 q は, 廃液中濃度 C_0 に平衡な土砂中濃度 q_0 で無次元化してある。土砂中の平衡濃度 q_0 は次のようにして決定した。試料砂を充填したガラスカラムに ^{90}Sr のみを含む廃液を通水することによって得た ^{90}Sr の分配係数値 kd は, $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度が $1.68 \text{ meq}/\text{l}$ のとき $4.4 \text{ ml}/\text{g}$ である (Table 5 参照)。 ^{90}Sr の分配係数値は $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度によって変化するから, 上記の kd 値を Fig. 5 を用いて, 通気層へ供給する廃液中の $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度 $1.53 \text{ meq}/\text{l}$ の場合に補正する。補正された kd 値は $4.8 \text{ ml}/\text{g}$ である。分配係数値の定義より

$$q_0 = kdC_0 \quad (2)$$

である。廃液中の ^{90}Sr 濃度は $C_0 = 2.2 \times 10^3 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であるから (Table 2 参照), 土砂中の ^{90}Sr 濃度は $q_0 = 1.1 \times 10^4 \mu\text{Ci}/\text{g}$ となる。

(3) ^{60}Co の地層内分布

地層に供給された ^{60}Co のほとんどは地層の表面近く, 深さ5cmまでの土砂中に交換吸着されており,

Table 5 Experimental conditions and distribution factors chosen for column experiments

Nuclide†	Sand bed			Influent solution				Distribution factor (ml/g)
	Height (mm)	Weight (g)	Porosity (%)	Hardness (meq/l)	pH	Activity (μCi/ml)	Elution rate (ml/cm ² ·min)	
⁶⁰ Co	22	90.0	40.0	1.54	7.3	3.0×10 ⁻³	2.84	25.6
⁹⁰ Sr	22	84.6	45.9	1.68	7.1	7.5×10 ⁻⁴	2.74	4.4

† Each nuclide used was carrier-free.

その深さ方向の分布は ⁹⁰Sr のように明確ではない。地層の中心軸から半径方向に 10cm 離れた位置での ⁶⁰Co の深さ方向の分布を Fig.12 に示す。⁶⁰Co の地層内平衡濃度 q_0 は、⁶⁰Co のカラム法に分配係数値が Ca+Mg 濃度が 1.54 meq/l のとき 25.6 ml/g であること* (Table 5 参照), および $C_0 = 1.6 \times 10^3 \mu\text{Ci/ml}$ であることから, $q_0 = 4.0 \times 10^4 \mu\text{Ci/g}$ となる。

⁶⁰Co は ⁹⁰Sr に比べて土砂によりよく交換吸着されるため、地層中を ⁹⁰Sr はほとんど深くまで移動しないことがわかる。これらの核種の移動深さの大小は分配係数値の大小と一致している。

IV. 考 察

⁹⁰Sr, ⁶⁰Co の地層内濃度分布について考察する。地層内で生ずる核種の移動を 1 次元輸送拡散方程式

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(C + \frac{1-f}{fs} \rho q \right) = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (vC) \quad (3)$$

で記述できるものとし、かつ拡散係数 $D (=D_m v)$ 、間隙流速 v 、地層の飽和度 s が一定であるとみなせる場合には、(2)式で定義される分配係数値を用い、

初期条件: $t=0 \quad q=0$

境界条件: $x=0 \quad q=q_0$

なる条件の下に(3)式を解いて、核種の地層内分布を表わす次の解を得ることができる。ただし地層内での水の移動速度が遅いことから(2)式が常に成立することを仮定している。

$$\frac{q}{q_0} = \frac{1}{2} \left[1 - \text{erf} \left\{ \frac{x - vt/K_{fu}}{2\sqrt{D_m v/K_{fu}}} \right\} \right] \quad (4)$$

ここに、 x : 地層表面から鉛直下方に測った距離

t : 実験開始後の経過時間

$$K_{fu} = 1 + \frac{1-f}{fs} \rho k_d$$

で定義され、通気層における核種の移動速度と水の移動速度との比を表わす⁽⁴⁾⁽⁵⁾。本実験では、地層が軸対称であること、拡散係数と地層の飽和度とがほぼ一定であるとみなせることから、廃液の浸透速度が地層断

面平均速度と等しい位置(地層の中心から半径方向へ約 10cm の位置)においては(4)式を用いて核種の地層内分布を推定することができると思われる。

地層の空隙率 $f=0.417$ 、飽和度 $s=0.325$ 、土砂の密度 $\rho=2.67 \text{ g/cm}^3$ 、分配係数値は ⁹⁰Sr が $k_{d,sr}=4.8 \text{ ml/g}$ 、⁶⁰Co が $k_{d,co}=25.6 \text{ ml/g}$ であることから K_{fu} (⁹⁰Sr)=56, K_{fu} (⁶⁰Co)=297。地層の長さ $L=138 \text{ cm}$ 、浸透流速 $v=59.3 \text{ cm/hr}$ 、標準拡散係数 $D_m=0.92 \text{ cm}^2/\text{hr}$ 、実験継続時間 $t=14 \text{ hr}$ であるから(4)式は

⁹⁰Sr について

$$q/q_0 = (1/2) \{ 1 - \text{erf}(\bar{x} - 2.80/3.21) \} \quad (5)$$

⁶⁰Co について

$$q/q_0 = (1/2) \{ 1 - \text{erf}(\bar{x} - 14.84/7.39) \} \quad (6)$$

となる。(5),(6)式を計算して Fig. 12 に示す。同図をみると、実測値と予測値とはあまりよく一致しておらず、かつ予測値が実測値を過小評価していることがわかる。この予測誤差は、予測値が 14 hr の廃液供給終了後、地層内間隙水が重力排水される期間の核種の移動および重力排水終了後の土壌水分の再配分に伴う核種の移動を考慮していないことに起因すると思われる。したがって、これらの影響を評価することによって予測誤差はさらに小さくなるものと考えられる。こうしたことから、通気層における放射性核種の移動を予測し、放射性廃液の漏出によって人間が最終的に受けられる障害の程度を推定するためには本章で述べた飽和度を考慮した時間変換係数 K_{fu} を用いることがほぼ妥当であることがわかる。

時間変換係数 K_{fu} は核種と水の地層内での移動速度の比を表わす。本実験では ⁶⁰Co, ⁹⁰Sr の地層内での移動速度は浸透水の浸透速度のおおのほぼ 1/300, 1/55 である**。また ⁹⁰Sr の移動距離は地層の中心軸付

* 分配係数値を求めるカラム実験と地層実験とで用いた模擬廃液中の Ca+Mg 濃度が等しいため、分配係数値を補正する必要がない。

** 同じ砂を充填して作った帯水層における実験結果(文献(6)参照)では ⁹⁰Sr の移動速度は地下水流速のほぼ 1/24 である。

Fig. 12 Comparison between predicted and observed concentration of ^{90}Sr and ^{60}Co at position 10 cm distant from central axis of stratum

近で最も深く約70cmである (Fig. 11 参照)。地層への模擬廃液の供給速度を降雨強度に換算すると74.2mm/hrとなる。つまり、本実験では74.2mm/hrの(^{90}Sr と ^{60}Co とを含む)降雨が14hr継続したことになり、総降雨量は約1,040mmに相当する。このことから、放射性核種を交換吸着してその移動速度を低減させるのに果す通気層の役割が大きいことがうかがえる。

V. 結 論

本研究によって得られた結論を整理すると次のようになる。

- (1) 廃液が地層を構成する土砂と接触すると、浸透水中のCa, Mg濃度が増加する。このCa, Mg濃度の上昇は浸透前面で著しく、濃度上昇は浸透量の増加とともに漸減するものの、長期間継続すると思われる。浸透水中のCa, Mg濃度が変化すれば核種の地層内での移動速度が変化する。
- (2) 地層の飽和度は給水開始後すみやかに給水速度に対応する平衡値に到達する。したがって、給水速度が一定で給水継続時間が長い場合には、地層の飽和度はほぼ一定であるとみなすことができる。ただし、土の粒度の影響を強く受けるものと考えられる。地層の飽和度は、実験条件下で、深さが増すにつれてやや増加する傾向を有する。
- (3) 地層内での水の拡散係数は、飽和度が増加する場合と飽和度が一定の場合とではほぼ等しい。実験条件下の標準拡散係数は $D_m=0.92\text{cm}^2/\text{sec}$ であった。

- (4) ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y の土層内での移動速度は速く、浸透水とはほぼ同速度であると思われる。 ^{90}Y をモニタすることにより ^{90}Sr , ^{60}Co の移動を予知することができよう。
- (5) 通気層が放射性核種を交換吸着し、その移動速度を低減させる効果は大きい。実験条件下では ^{60}Co , ^{90}Sr の地層内での移動速度は浸透水の浸透速度のおおの約1/300, 1/55であると予想された。
- (6) 通気層中での核種の移動をより正確に予測するためには、廃液の非常浸透現象、土壌水分の移動等を記述するためのより厳密な理論展開が必要である。しかしながら、通気層中に漏出した放射性核種によって影響を受けるであろう障害の程度を推定する場合には通気層における時間変換係数を用いる方法を適用することができよう。

本研究は昭和47年度原子力平和利用基金の援助を得て実施した。記して関係者各位に感謝の意を表します。

— 参 考 文 献 —

- (1) 井上頼輝, 森沢真輔: 本誌, 14(10), 522 (1972).
- (2) 赤木文行: 京都大学修士学位論文, (1971).
- (3) RIFAI, M.N.E., *et al.*: Dispersion phenomena in laminar flow through porous media, San. Eng. Res. Lab., Univ. of Calif., Berkeley (1956).
- (4) INOUE, Y., KAUFMAN, W.J.: *Health Phys.*, 9, 705 (1963).
- (5) 井上頼輝, 赤木文行: 土木学会第26回年次学術講演会要旨集(II), pp. 633~634 (1971).
- (6) 井上頼輝, 森沢真輔: 本誌, 投稿中.