621. 帯水層における放射性核種の移動, (I)

模型地層による実験的検討

井上 頼輝*, 森澤 眞輔*

(1975年 6月27日 受理)

(1975年 11月10日 再受理)

Migration of Radionuclides in a Model Saturated Zone, (I) *Experiments and Discussion*

By Yoriteru INOUE and Shinsuke MORISAWA

Leaching of radionuclides from solidified waste and its migration characteristics are tested using a model sand layer, whose depth 50cm, width 40cm, length 105cm and consist of 306kg sand taken from Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai Site. Model solidified waste (19.6cm dia. and 50cm height), solidified with portland cement containing seven nuclide (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{54}Mn , ^{59}Fe and ^{110m}Ag), is set in the saturated sand layer and the concentration of nuclides in a pore water of the layer is checked after specific intervals of time. After about 1,280 days, the saturated sand layer is taken to pieces and a distribution of a nuclide in a bedded sand is also checked.

The results obtained through this experiment are as follows: (1) Among seven radionuclides, only ^{90}Sr are detected in both pore water and bedded sand. (2) The distribution of ^{90}Sr in a pore water of the layer becomes steady after about 500 days. This steady distribution is closely related to the steady leaching of ^{90}Sr out of solidified waste. (3) First stage leaching of ^{90}Sr out of solidified waste close after the contact with water is large, but it results in flat distribution rapid as the nuclide migrates through a sand layer, which means a large ^{90}Sr exchange capacity of bedded sand. (4) Theory of K_d -factor depicts well a migration rate of ^{90}Sr in a model saturated sand layer.

KEYWORDS: model saturated zone, solidified wastes, strontium 90, radioactive wastes, migration, leaching, radionuclide, saturated sand layer, pore water

I. はじめに

放射線物質がなんらかの事故により地中に漏洩したり、あるいは放射性廃棄物を地中処分する場合には、まず第1に、これら環境中に放出された放射性物質が食物連鎖などの生態学的連鎖を経て人体に摂取された場合に人体の受ける障害の程度が、許容できるレベル以下であることを確認する必要がある。そのためには、特に地下水層(帯水層)中へ移行した放射性物質が地下水とともにどのように移動するかを把握する必要がある。

帯水層における放射性核種の移動に関する研究は従来から、通気層における挙動に関する研究に比べると比較的進んでいる。これらの研究は、大別すると、実際の廃棄物地中処分場における放射性物質の分布の現状調査として実施されているものと、放射性物質の移動を記述する理論を小規模な実験によって検討しようとするものとに分類できる。前者の研究は、放射性物質の移動の将来予測が充分に行い得ていない現状に、また後者の研究は、理論を検証するための実験が主と

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

してカラムなどを用いた1次元通水実験であり、したがって現実との対応に無理がある点に不十分な点があるといえる。本研究は後者の研究に属するのであるが、帯水層模型実験装置を用い、放射性物質の帯水層中での移動現象をより現実に近い状態で実験的に検討することを目的としている。すなわち、帯水層模型中に放射性同位元素を含むセメント固化体を設置し、セメント固化体から浸出した放射性同位元素が地層中をどの

ように移動するかを、主として放射性廃棄物地中処分の安全性を考える場合に重要な ^{90}Sr に注目して ^{60}Co 長期にわたって実験的に検討した。

II. 実験

1. 地層模型の概要

(1) 装置の概要

実験に用いた帯水層模型をFig. 1に示す。地層模型

Fig. 1 Saturated sand layer model for testing migration of radionuclides leached from waste solid (Number in the figure means millimeter.)

は二重の水槽から成り、土砂を充填して帯水層となる内側の水槽は深さ55cm、長さ105cm、幅40cmである。内側と外側の水槽の間には水を満して、クールニクス・サーキュレータ*を用いて水温をコントロールすることによって、模型帯水層全体の温度をコントロールした。地層内の5ヵ所および室温を測温抵抗体および打点式記録計を用いて自動的に測定・記録した。

内側の水槽に日本原子力研究所 東海研究所構内から得た土砂306kgを深さ50cm、空隙率35.6%となるように充填した。砂は粘土分をほとんど含んでおらず、有効径 255μ 、均等係数2.0、密度 2.64 g/cm^3 である。標準酢酸アンモニウム法で測定した砂の陽イオン交換容量は $9.7 \pm 0.6\text{ meq/g-sand}$ であった。カラム法で測定した砂の分配係数値を核種ごとに、実験条件とともに整理してTable 1に示す。

地層への水道水の供給速度は、実験開始時は $250 \pm 20\text{ ml/min}$ (間隙平均速度 $506 \pm 40\text{ cm/day}$)であったが、その後地層間隙の目づまりを生じて急激に低下し実験開始後1~6ヵ月間は $55 \pm 5\text{ ml/min}$ (間隙平均速度 $110 \pm 10\text{ cm/day}$)、その後さらに漸減して実験開始後1年より実験終了までの期間は $15 \pm 5\text{ ml/min}$ (間隙平均速度 $30 \pm 10\text{ cm/day}$)の範囲をほぼ1ヵ月の周期で変動した**。実験継続期間(1,280 day)中の地層内温度は $20^\circ \pm 2^\circ\text{C}$ であった。

(2) 模擬固化体

地層内には流入端から30cm 流下側に放射性核種を封入固化したセメント固化体を設置した。固化体は普

* 冷却器と加熱器とを兼備する還流式の水溫制御器。

** ただし、実験期間中は模型地層の流入側と流出側との水位差を4cmに調節・維持した。

Table 1 Experimental conditions and distribution factors

Nuclide	Soil-bed			Influent solution				Elution rate (ml/cm ² ·min)	Distribution factor (ml/q)
	Height (mm)	Weight (g)	Porosity (%)	Hardness (meq/l)	pH (-)	Sat. index (-)	Activity (μCi/ml)		
⁹⁰ Sr	59.0	50.0	33.1	1.58	7.18	-0.72	3×10 ⁻³	1.97	4.9
⁶⁰ Co	70.0	50.0	44.9	1.63	7.06	-0.71	3×10 ⁻³	2.20	25.4
¹³⁷ Cs	20.0	20.0	32.8	1.61	7.20	-0.67	3×10 ⁻³	1.48	694.6
⁵⁴ Mn	*	10.0	*	0.92	7.51	-1.24	4×10 ⁻⁴	*	35.2
⁶⁵ Zn	*	10.0	*	2.01	7.32	-0.70	7×10 ⁻⁴	*	30.0
⁵⁹ Fe	*	10.0	*	1.38	7.76	-0.69	1×10 ⁻³	*	1.4
^{110m} Ag	*	10.0	*	1.36	7.72	-0.56	4×10 ⁻⁴	*	15.7

* Distribution factor of ⁵⁴Mn, ⁶⁵Zn, ⁵⁹Fe and ^{110m}Ag were obtained by batch operation and those of ⁹⁰Sr, ⁶⁰Co and ¹³⁷Cs by column operation.

通ポルトランドセメント22.61 kgを、放射性核種を含む水道水9.05 kgで粘りまぜて(水・セメント比40%), 塩化ビニルパイプを型枠として打設した。セメント固化体は直径19.6cm, 高さ51cm, 湿潤状態で7日間養生した後、型枠からはずして実験に使用した。

セメント固化体中に封入固化した放射性核種は、原子力発電所から排出される放射性核種のうちから選び、⁹⁰Sr 5 mCi, ⁶⁰Co 100 μCi, ¹³⁷Cs 6 μCi, ⁵⁴Mn 2.5 μCi, ⁶⁵Zn 5 μCi, ⁵⁹Fe 0.01 μCi, ^{110m}Ag 4 μCi とした。これら各放射性核種の封入量は、原子力発電所から発生する放射性核種の発生比率を参考にし、かつ安全で意味のある実験を行うことを目的にして決定した。例えば⁶⁰Coの封入量は、⁶⁰Coのセメント固化体からの浸出速度が小さいため、意味のある実験を行うためには数10 Ciが必要であると推定されたが、実験では担当者の安全を確保するために⁶⁰Coの封入比率を少なくし、逆に放射性廃棄物地中処分の安全性を評価する上で重要な核種である⁹⁰Srの封入比率は大きくした。

2. 地層内の水流流況

長さ55cm, 直径5mm(検出部は直径0.5mm, 長さ10mmの白金)の電極を用いて、トレーサ法によって地層間隙水の流速を測定した。すなわち、地層内に設置した(Fig. 2参照)電極の上流側に注射器でNaCl溶液を注入し、電極間の電気伝導度に変化するまでの時間を読み取って所定の位置の流速を算出した。本測定法で間隙水の流速を測定する場合の測定誤差は±25%程度であると思われる。

3. セメント固化体からの核種の浸出

本実験では、地層内に設置したセメント固化体から浸出する放射性核種の浸出量を直接定量的に把握することができないため、セメント固化体からの放射性核

種の浸出速度を測定するための基礎実験を高さ5cm, 直径3.4cm, 重さ約150gの円柱状供試体を用いて実施した。供試体は普通ポルトランドセメントを放射性核種(おのおの⁵⁴Mn, ⁵⁹Fe, ⁶⁵Zn, ^{110m}Agのうちの1核種)を含む水道水で粘りまぜ、塩化ビニルパイプを型枠として7~8日間湿潤養生した後、上面および下面に塩化ビニル板をはりつけたものを用いた。浸出実験に用いたセメント供試体の製作条件を整理してTable 2に示す。この供試体を室温、大気圧下で250 mlの水道水中に浸漬し、一定時間ごとに浸漬水中の放射性核種濃度を測定した。浸漬水は、浸漬水をサンプリングするごとに全量を交換した。

⁵⁴Mn, ⁵⁹Fe, ⁶⁵Zn および ^{110m}Ag 以外の核種(⁹⁰Sr, ⁶⁰Co および ¹³⁷Cs)のセメント固化体からの浸出速度は、寺島ら²⁾の報告した値を利用することにした。寺島ら²⁾は放射性核種のセメント固化体からの浸出機構が放射性核種の種類によって定まることを示している。本実験で採用した放射性核種のセメント固化体からの浸出実験の実験条件(Table 2参照)は、模擬固化体の作製条件と、特に固化体内に固化する核種量(固化体単位重量当りの放射性核種量)の点で等しいとはいえないが、この条件の差異は両者の相互関連を論ずる上で支障とはならない。また、本実験で用いた供試体に固化した放射性核種の総量は1~30μCiであるが、この放射性核種量は核種のセメント固化体からの浸出速度を実測する上で十分な量である。

4. 地層内での核種の移動

実験開始後、模型地層内の所定の位置(間隙水の流下方向に10cm間隔, 流下方向と直交する方向に5cm間隔, 深さ方向には地層表面から10, 30, 48cmの位置に合計約110の間隙水サンプリング位置を設定した)から注射器を用いて間隙水0.5 mlを採取した。採取した

間隙水を試料皿中で蒸発乾固した後、おのおの β 線を 2π ガスフロー・カウンタで、 γ 線を400チャンネル波高分析器で計測した。また、地層への流入水・地層からの流出水については水中のCa+Mg濃度、M-アルカリ度、水素イオン濃度(pH)を測定した。

模型地層への通水を停止し(通水継続時間1,280day)地層の間隙水を排除して地層を解体した。地層内の所定の位置(間隙水の流下方向に10cm間隔、流下方向と直交する方向に5cm間隔、深さ方向に10cm間隔の位置にサンプリング位置を設定した。ただし底面のみは地層表面から深さ48cmの位置を採用した)から土砂約10gを採取した。採取した土砂に1NHCl溶液50mlを加えてよく振とうした後48hr放置し、液相へ移行した放射性物質を、おのおの β 線について 2π ガスフ

Number allotted to each electrode means observed water velocity, that is shown in a normalized form by mean outlet velocity

Fig. 2 Arrangement of resistance thermometers for measuring temperature and platinum electrodes for obtaining a water velocity in a sand layer

ロー・カウンタで、 γ 線について400チャンネル波高分析器で計測した。1NHCl溶液による放射性核種の溶離率は ^{90}Sr が94.7%, ^{60}Co が95.2%であった。

Ⅱ. 実験結果

1. 地層内の水流流況

トレーサ法によって測定した地層間隙水の流速を、地層流出端付近の流速で無次元化してFig. 2に示す。一方、地層内での水の移動が2次元ポテンシャル流れであるとみなして、基礎式*を数値的に解いて得た地層内の流速分布をFig. 3に示す。実測値(Fig. 2)はトレーサ法の測定精度の範囲内で、模型地層が均質・等方性であるとの仮定の下に理論的に推定した流速分布(Fig. 3)とよく一致している。このことは、作製した模型地層が水理学的にはほぼ一様な地層であることを示している。

Calculated value agrees well with the observed water velocity shown in Fig. 2.

Fig. 3 Calculated water velocity distribution in a sand layer

Table 2 Experimental conditions and leaching flux of each nuclide from portland cement solid

Nuclide	Size of cement solid			Contained activity		Water/Cement ratio (%)	Curing time (day)	Leaching flux for initial 70 day†† (1/cm ² ·day)
	Height (cm)	Radius (cm)	Weight (g)	Specific (μCi/g)	Total (μCi)			
^{54}Mn	5.1	1.7	87.5	0.014	1.2	50	8	1.1×10^{-6}
^{59}Fe	5.1	1.7	87.1	0.081	7.1	50	8	3.5×10^{-7}
^{65}Zn	5.0	1.7	85.5	0.18	15.5	50	7	2.0×10^{-6}
^{110m}Ag	5.0	1.7	85.1	0.39	33.2	50	7	7.1×10^{-6}
$^{90}\text{Sr}^\dagger$	5.0	1.7	~85	~0.11	~9	40	7	6.0×10^{-6}
$^{137}\text{Cs}^\dagger$	5.0	1.7	~85	~0.24	~20	40	7	1.0×10^{-4}
$^{60}\text{Co}^\dagger$	5.0	1.7	~85	~0.27	~23	40	7	7.5×10^{-6}

† Data for ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{60}Co were taken from Terashima's report⁽²⁾.

†† Leaching flux is shown normalized by initial total contained activity.

2. セメント固化体からの核種の浸出

^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{59}Fe , ^{110m}Ag のおのおのをセメントで固化して得た供試体を用いて行なった浸出実験の実験条件と、浸出開始後70日間の平均浸出率を整理してTable 2に示す。同表に寺島ら⁽²⁾の報告した ^{90}Sr ,

^{60}Co , ^{137}Cs についての実験結果も併せて示す。

$$* \quad \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2} = 0, \quad v_x = -\frac{\partial \phi}{\partial x},$$

$$v_y = -\frac{\partial \phi}{\partial y}$$

ここに、 ϕ : 速度ポテンシャル

v_x, v_y : おのおの x, y 方向の流速

3. 地層内での核種の移動

(1) 地層流入・出水の水質

地層流入水が、地層中を通過することによって増加する Ca+Mg 濃度、M-アルカリ度、pH 値の増加分を Fig. 4 に示す。地層流入水中のこれら水質因子は時間とともに変動しており、その変動域は Ca+Mg 濃度が 1.08 ± 0.02 meq/l, M-アルカリ度が 0.82 ± 0.18 meq/l, pH 値が 7.01 ± 0.27 である。水中のこれら水質因子はいずれも地層中を通過する間に増加している。水質因子の濃度増加は実験開始直後に著しく、時間の経過とともに比較的早く低減するものの、濃度増加の状態は長期間継続する。地層への流入水中の Ca 濃度は CaCO_3 の溶解飽和濃度*よりも低いため、Ca+Mg 濃度の上昇は地層内の溶解性 CaCO_3 がなくなるまで続くものと思われる。間隙水中の Ca+Mg 濃度は ^{90}Sr , ^{60}Co 等の核種の土壌との相互作用を考える場合に重要な役割を果たす⁽⁴⁾⁽⁵⁾。

Fig. 4 Increase of water quality index (pH: M-alkalinity, meq/l: Concentration of Ca+Mg, meq/l) between inlet of sand layer and outlet

(2) 核種の水中濃度分布

注射器で採取した地層間隙水中に γ 線放射能を検出することはできなかった。このことは、 γ 線を放出する核種がセメント固化体から浸出しなかったか、あるいは浸出したとしても極微量であったため、検出できなかったことを意味する。

地層間隙水中に β 線放射能が検出された。地層間隙水中の放射性核種の β 線エネルギー・スペクトルの測定結果、および間隙水サンプル中核種の放射能がほぼ2週間後に永続平衡に達することから、この放射性核種は ^{90}Sr であると考えられる。実験開始後 55, 265, 859 および 1,269 day 後の地層表面から深さ 30cm の水平断面における地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布をおのおの Fig. 5 (a)~(d) に示す。地層間隙水の流下方向に沿った縦断面内における間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布を Fig. 6 に、また間隙水の流下方向、セメント固化体

の中心を通る縦断面内の深さ 30cm, セメント固化体中心よりおのおの 10, 40, 60cm の位置における間隙水中 ^{90}Sr 濃度の経時変化を Fig. 7 に示す。

(a) After 55 days

(b) After 265 days

(c) After 859 days

(d) After 1,269 days

Fig. 5 Horizontal distribution of ^{90}Sr , pCi/ml-water, in a pore water of sand layer at 30cm depth

セメント固化体から浸出した ^{90}Sr は地層間隙水に運ばれて地層内を移動し、しだいにその分布域を広くしていく (Fig. 5 参照)。 ^{90}Sr の分布域の先端付近では、濃度域がはく離 (Fig. 5 (b)) したり、流れと直角方向にゆらぐ (Fig. 5 (c)) 等の現象が認められる。 ^{90}Sr の濃度分布は模型地層の中心軸に対しほぼ左右対称であ

* 地下水中の Ca 濃度が CaCO_3 の溶解度定数より定まる飽和濃度に比べて過飽和であるか、未飽和であるかは、飽和指数 (Saturation Index: Table 2 参照) によって判定できる⁽⁶⁾。正の飽和指数は過飽和を、負の飽和指数は未飽和を意味する。

Fig. 6 Vertical distribution of ^{90}Sr in a pore water, after 1,269 days

るといえる。

Fig. 7をみるとセメント固化体からの ^{90}Sr の初期浸出が著しいということがうかがえるが、同時に、 ^{90}Sr の初期浸出による間隙水中の高濃度は流下とともに急激に低減することがわかる。また、セメント固化体(半径約9.8cm)の近くでは、時間が経過しても間隙水中の ^{90}Sr 濃度はある程度変動しているが、セメント固化体中心より40, 60cm流下した位置では300~500 day経過するとほとんど ^{90}Sr 濃度の変動が認められなくなる。

間隙水中の ^{90}Sr の縦断面内分布(Fig. 6)をみると、 ^{90}Sr の移動速度が深さ方向に必ずしも一様でないこと、このことから逆に ^{90}Sr の輸送媒体である地層間隙水の移動速度が一様でなく、密度流が生じていることがわかる。地層底面付近に高く、地層表面付近に低い ^{90}Sr 濃度分布は後に述べるように、間隙水中 ^{90}Sr 濃度の平均的変動を表わすと思われる土壌中の ^{90}Sr 濃度分布(Fig. 9)についても確認されている。密度流の原因は明らかではないが、地層内温度の不均一(温度差密度流)やCa+Mg濃度などの不均一(濃度差密度流)などが原因であると思われる。高濃度域(100 pCi/ml以上)の進行が底面付近ではなく、深さ30cm付近にあることが特異的である。

(3) 核種の土砂中濃度分布

セメント固化体からの数 cm 以上離れた位置の土砂

Fig. 8 Horizontal distribution of ^{90}Sr in a bedded sand, pCi/g-sand, at 30cm depth after 1,280 days

Fig. 7 Variation of ^{90}Sr concentration in a pore water at each 10, 40 and 60cm downstream from center of solidified waste

からは γ 線放射能を検出することができなかった。一方、セメント固化体流下側表面の極近傍から採取した土砂からは γ 線放射能が検出されたが、定量は不可能であった。この γ 線は、セメント固化体への封入核種量、セメント固化体からの浸出速度などから考えて、 ^{60}Co , ^{137}Cs によるものと思われる。

模型地層解体時(実験開始後1,280 day)の土砂中 ^{90}Sr 濃度分布を深さ30cmの水平断面についてFig. 8に、セメント固化体の中心を通り地層間隙水の流下方向に沿った縦断面についてFig. 9に示す。同図を見ると、固化体の上流側の模型地層底部に100 pCi/gの ^{90}Sr の分布が認められる。地層の底部付近では、地層間隙水の流況は必ずしも一様でなく、特に固化体の周辺で乱れることがあることがわかる。

^{90}Sr の土砂中濃度分布は地層間隙水中の濃度分布とよく類似している。土砂中濃度分布と間隙水中濃度分布とを比較すると、間隙水の流れと直角方向における等濃度域の広がり、間隙水中濃度の方がやや著しいといえる。これは、間隙水の採取を注射器で急激に行なったことにより、間隙水の高 ^{90}Sr 濃度域が強制的に拡大されたためであると思われる。Fig. 5(d)の間隙水

Fig. 9 Vertical distribution of ^{90}Sr in a bedded sand, pCi/g-sand, after 1,280 days

中 ^{90}Sr 濃度と Fig. 8 の土砂中 ^{90}Sr 濃度との間に平衡関係が成立しているものとすれば、間隙水中濃度(c)に対する土砂中濃度(q)の比として定義される ^{90}Sr の平衡分配係数(c/q)はほぼ 10 ml/g であるといえよう。すなわち、Fig. 5(d)の ^{90}Sr 濃度分布を10倍すれば、ほぼ Fig. 8 の土砂中濃度分布を得ることができる。

Ⅳ. 考 察

寺島ら⁽²⁾⁽⁶⁾は ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co の普通ポルトランドセメント固化体からの浸出機構について詳細な実験的・理論的研究を実施し、 ^{90}Sr の浸出機構については次のような研究成果を報告している。すなわち、セメント中に固化された ^{90}Sr の90%は水酸化物としてセメント水和物結晶中にとりこまれ、その浸出はセメント固化体表面の溶解や破壊によってのみ生じること。このときのセメント表面の溶解速度係数 α は $2 \times 10^{-6} \text{ cm/day}$ であること。また、セメント固化体中の ^{90}Sr の10%はセメント水和物と結合状態になく濃度差による内部拡散(拡散係数 $3.4 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$)によって浸出し、単位面積・単位時間当りの ^{90}Sr 浸出量 $N(\mu\text{Ci}/\text{cm}^2 \cdot \text{day})$ と浸出可能な状態にある ^{90}Sr 量 $M_m(\mu\text{Ci})$ との比が次式で与えられることを示している。

$$\frac{N}{M_m} = \frac{2D}{\pi R^3 h} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left\{-\left(\frac{D\beta_n^2}{R^2} + \eta\right)t\right\} \quad (1)$$

ここに、 R : 固化体の半径(9.8cm)

h : 固化体の高さ(50cm)

D : 内部拡散係数($3.4 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$)

t : 浸出時間(day)

η : 崩壊速度定数とセメント内での捕捉速度定数との和($3.46 \times 10^{-2} \text{ 1/day}$)

β_n : $J_0(\beta) = 0$ の根

一方、セメントの溶解によって浸出する ^{90}Sr については、セメント中に固定されている ^{90}Sr の初期量を $M_f(\mu\text{Ci})$ とすれば、その浸出速度比(無次元フラックス) N/M_f は次式で与えられる。

$$\frac{N}{M_f} = \frac{\alpha}{\pi R^2 h} \quad (2)$$

浸出の初期には、セメントの溶解現象のみによって ^{90}Sr の浸出を説明できないことがあるが、数10dayを経過すれば、セメントの溶解による核種の浸出は(2)式で精度よく説明できることが確かめられている。

セメント固化体への ^{90}Sr の封入量を $M_0(\mu\text{Ci})$ とすると、 $M_f = 0.9 M_0$, $M_m = 0.1 M_0$ である。(1),(2)式を計算して、おのおのの ^{90}Sr 浸出速度比 N/M_0 を

Fig. 10 に示す。Fig. 10を見ると、セメント固化体の溶解および内部拡散によって浸出する ^{90}Sr の浸出速度比(無次元フラックス)は、浸出開始後 360 day ではほぼ等しくなり、400~500 day を経過するとセメント固化体の溶解速度によって定まる一定値($1.85 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$)になることがわかる。 ^{90}Sr の浸出がほぼ400~500 day 経過後に定常に達するというこの推定は、 ^{90}Sr の地層間隙水中の濃度がこのころにほぼ定常になるとの実験結果(Fig. 7 参照)とも一致している。このことは逆に、実験開始後 400~500 day を経過した地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度分布がセメント固化体から浸出する ^{90}Sr 量に応じた定量分布であるとみなしうることを示している。

Calculation was done using some reported data⁽²⁾ on the leaching characteristics of ^{90}Sr from portland cemented solid.

Fig. 10 Comparison of two-type of ^{90}Sr leaching flux from a cemented solid (Internal diffusion and solution of waste solid itself)

著者⁽⁷⁾の提案した放射性核種の移動を予測する理論によると、放射性核種が一定距離を移動するに要する時間 T は、地下水の移動所要時間 t の K_f 倍になる。すなわち、

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

ここに、 f : 地層の空隙率(0.356)

ρ : 土砂の密度(2.64 g/cm^3)

k_d : 核種の分配係数

である。実験開始直後の地層流出水中の $\text{Ca} + \text{Mg}$ 濃度とはほぼ同じ濃度下で測定した ^{90}Sr の分配係数値は

$k_d=4.9$ ml/g (Table 1 参照)であるから, ^{90}Sr の移動に要する時間は $T=K_f t=24 t$ となる*。すでに述べたように, 実験開始時の地層間隙水の間隙平均流速は 506 ± 40 cm/day, 固化体中心から地層流出端までの距離は 75 cm であるから $t=0.148\pm 0.012$ day となる。ゆえに, ^{90}Sr が地層流出端に到達するに要する時間は $T=3.6\pm 0.3$ day と推定される。ただし, セメント固化体からの ^{90}Sr の浸出に時間遅れはないと仮定している。一方, 実験開始後 4 日目にセメント固化体から 60 cm 流下側の間隙水中に ^{90}Sr が検出されていること (Fig. 7 参照) から, ^{90}Sr が地層流出端に到達するに要した時間は 4~5 day であったといえる。 ^{90}Sr の移動に要する推定所要時間は実所要時間とほぼ一致しているといえよう。

カラム法による分配係数値 (4.9 ml/g: Table 1) と ^{90}Sr の間隙水・土砂中濃度分布を比較して得た分配係数値 (10 ml/g) とは一致しなかった。この 2 つの分配係数値が一致しなかった原因としては, (1) カラム実験の間隙水中の $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度の方が実験終了期の地層間隙水中の $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度よりも約 0.15 meq/l だけ大きいこと, (2) 間隙水の流速がカラム実験の方が約 2 桁大きいこと, (3) 地層間隙水の pH はカラム間隙水の pH よりも大きいこと, などを考えることができる。間隙水中の $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度が増加すると ^{90}Sr の分配係数値は小さくなる⁽⁴⁾。また, 地層間隙水の流速が大きくなれば水中の ^{90}Sr と土砂との接触時間が短くなることから, 分配係数値は小さくなることが予想される。pH 値が分配係数値に及ぼす効果は, 特に pH が低い領域では水素イオンによる影響を受けて分配係数値が小さくなりうるということが報告されている⁽⁵⁾。しかしながら, 本研究で問題にしている pH 範囲 (7.0~8.1) では pH の影響は著しくはないものと思われる。ただし, pH 値が高くなると ^{90}Sr の水中における存在形態が変化し, みかけの分配係数値が大きくなることが考えられるので今後研究が必要である。

寺島ら⁽²⁾はセメント固化体からの放射性核種の浸出機構を 3 つの分類した。その 1 は, ^{137}Cs で代表される機構で, 核種の浸出は濃度差による内部拡散によって支配される。その 2 は, ^{60}Co で代表される機構で, 核種がセメント水和物中にとりこまれるため, その浸出はセメント自身の溶解によって支配される。その 3 は, ^{90}Sr で代表される機構で, 一部は内部拡散, 他の一部はセメント自身の溶解によって支配される。一般に内部拡散による浸出は溶出初期に卓越し, 長期の浸出はセメントの溶解によるものが支配的である。本研

究で実測した ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{59}Fe および ^{110m}Ag の浸出機構を上記の浸出パターンに分類すると, ^{54}Mn と ^{59}Fe は内部拡散とセメントの溶解とが共存する ^{90}Sr 型, ^{65}Zn と ^{110m}Ag はセメントの溶解に支配される ^{60}Co 型に属している。

V. 結 論

本報で明らかになった結論を整理すると以下のようになる。

- (1) 実験継続期間 (約 3.5 yr) 中にセメント固化体から浸出し, 模型地層中を移動した放射性核種は, セメント固化体中に封入した ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{65}Zn , ^{110m}Ag のうち, ^{90}Sr であった。その他の核種は地層中での移動を確認することができなかった。
- (2) ^{90}Sr のセメント固化体からの大きな初期浸出の効果を反映して, 地層間隙水中の ^{90}Sr 濃度は実験開始直後には特に高かった。しかし, 固化体からの ^{90}Sr の初期浸出の影響はセメント固化体からの流下距離が大きくなるにつれて急激に低減する (Fig. 7 参照)。このことは, 土砂が高濃度の放射性核種を平均化する能力 (緩衝能力) が大きいことを示している。したがって, 放射性廃棄物のセメント固化体を地中処分する場合には, 固化体からの核種の平均浸出量を用いて安全性を評価することができよう。
- (3) ^{90}Sr のセメント固化体からの浸出は, 浸出開始後ほぼ 400~500 day で定常に達すると思われる。したがって, この期間を経過した後の地層間隙水中 ^{90}Sr の濃度分布は, セメント固化体からの ^{90}Sr の浸出量と地層間隙水の流速分布とに応じた定常分布であるといえよう。
- (4) 模型地層流出液中の pH, $\text{Ca}+\text{Mg}$ 濃度, M-アルカリ度は ^{90}Sr の検出に先立って著しい変動を示した (Fig. 4, Fig. 7 参照)。特に pH の変動は著しく, この性質は廃棄物地中処分場周辺での核種の移動を監視する予測指標として利用できる可能性がある。さらに詳しい検討が必要である。
- (5) ^{90}Sr が地層流出端に到達するに要する時間は, 分配係数値と K_f ファクターとを用いることによりほぼ予測することができた。
- (6) セメント固化体からの ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{59}Fe , ^{110m}Ag の浸出機構を分類すると, ^{54}Mn と ^{59}Fe は内部拡

* (3) 式において, $f=0.356$, $\rho=2.64$ g/cm³, $k_d=4.9$ ml/g である。ゆえに, $T/t=K_f=24$ 。

散とセメントの溶解によって浸出する ^{90}Sr のパターンに、また ^{65}Zn と $^{110\text{m}}\text{Ag}$ はセメント自身の溶解によって浸出が支配される ^{60}Co のパターンに属する。

本研究の一部は昭和45年度科学技術庁原子力平和利用研究費の援助を得て実施した。また、実験に際しては許邦福氏(当時京都大学大学院院生)の助力を得た。記して感謝の意を表します。

— 参 考 文 献 —

- (1) 井上頼輝, 森澤眞輔: 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) 寺島 泰, 他: セメント固化体中 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co の溶出

- 機構, 土木学会論文報告集, No. 201, 51~60 (1972).
- (3) FAIR, G.M., GAYER, J.C.: "Water Supply and Waste Water Disposal", (1956), John Wiley and Sons.
- (4) 井上頼輝, 森澤眞輔: 放射性核種の分配係数値の変化, 保物協第7回研究発表会要旨集, p. 37 (1972)
- (5) AHLSTROM, S.W., et al.: Method for estimating transport model parameters for regional ground-water systems, BNWL-1717, (1974).
- (6) 寺島 泰: 固化体中放射性核種の浸出過程とその解析方法, 土木学会論文報告集, No. 209, 51~61 (1973).
- (7) INOUE, Y., KAUFMAN, W.J.: Prediction of movement of radionuclides in solution through porous media, Health Phys., 9, 705~715 (1963).
- (8) 筒井天尊, 西牧研社: 放射性核種の帯水砂層中での挙動に関する基礎的研究, 土木学会論文報告集, No. 200, 25~29 (1972).

投 稿 歓 迎!

(1975.11 一部改正)

本誌「投稿欄」の内容は、次のとおりです。

◆掲載料は1篇5ページ以内@5,000円・6~10ページ@10,000円・11ページ以上@15,000円に改定されましたので、ご留意願います。◆

① 研究論文	研究の対象・方法あるいは結果に独創性・創造性があり、かつ明確で価値ある結論や事実を含み、未公開のもの。
(欧文は「欧文誌」に掲載)
② 技術報告	材料の製作・施設・設備・装置等の設計・試験・運転などの新しい経験やその結論をまとめた実用価値のある論文で、未公開のもの。(欧文は「欧文誌」に掲載)
③ ショート・ノート(2頁程度)	研究・技術上の独創的でかつ重要な発見または結論を含む論文の速報。(欧文は「欧文誌」に掲載)
④ レター(1~2頁)	掲載論文に対する質疑応答および意見。(欧文は「欧文誌」に掲載)
⑤ 資 料	研究・技術に関する参考資料および調査集計報告など。
⑥ 私のノートから(1~2頁)	各専門分野の研究または技術上の経験、斬新なアイデア、珍しい実験結果など。
⑦ 談話室(2頁程度)	内外の会議・学会などの見聞記、あるいは科学・技術上の提言など。
⑧ 新刊紹介(800字程度)	内外の出版物の書評および紹介。
⑨ 会員のこえ(600字程度)	本会および本誌などに対する批判的ご意見・ご希望・ご提案などの自由投書。(用紙自由、誌上匿名可)

巻頭言、特別寄稿、解説、総説、講演、特集等は編集委員会で立案・企画して執筆依頼する。ご投稿には、「投稿規程」、「投稿の手引」に従って、所定の原稿用紙(30枚綴り1冊200円 千70円。欧文は市販のタイプ用紙)により、「投稿票」(付チェックリスト)(1部50円、千25円)を添付して事務局宛ご送付下さい。

「投稿規定」、「投稿票」の一部が変更になりましたので、特にご留意願います。