漏出した原子炉 1 次冷却水中放射性物質の 砂 状 土 壤 に よ る 捕 集

加藤 正平*, 穴沢 豊*, 岩谷 征男*,
和達 嘉樹**, 笠井 篤**, 吉田 芳和*

(1977年 11月 4 日 受理)

Fixation of Radioactive Materials Released from Reactor Cooling Water by Sandy Soil

By Shohei KATO, Yutaka ANAZAWA, Yukio IWAYA,
Yoshiki WADACHI, Atsushi KASAI and Yoshikazu YOSHIDA

Environmental effect of radioactive materials should be evaluated if an unexpected leakage of reactor cooling water occurs. Migration of ionic radioactive materials in the ground has been widely studied regarding the waste disposal, however, that of non-ionic materials such as radioactive cobalt in reactor cooling water has not been so much studied.

In this paper, the fixation of radioactive materials from the reactor cooling water by soil has been investigated by means of a column bedded with sandy soil. It is shown that migrating behavior of the non-ionic cobalt is largely different from that of ionic cobalt. The empirical formula for penetrating ratio of the non-ionic cobalt through sandy soil is derived from the experiment.

On the basis of the data obtained from both experiment and accidental release of the reactor cooling water, a method is discussed to evaluate the migration of radioactive cobalt in sandy soil.

KEYWORDS: release, environment, reactor cooling water, solidification, radioactive cobalt, non-ionic material, penetrating ratio, sandy soil, empirical formula, evaluation method, radionuclide migration

I. 緒 言

原子炉 1 次冷却水(以下炉水)がなんらかの原因により系外へ漏出した場合、漏出放射性物質による環境への影響の評価が必要となる。評価に際して放射性物質の地層中挙動についての知識が基礎となるが、これについての研究は放射性廃棄物の地中処分に関連して、主として放射性物質がイオン状の場合について行われており⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾、炉水中放射性物質のような非イオン状のものに関するものは少ない。

本報では、炉水中放射性物質の砂層中の挙動についての知見を得るため、カラム法により調べた炉水中放射性 Co の砂層による捕集について述べた。これらの結果からイオン状放射性物質との差異を明確にし、炉水中放射性 Co の砂層中透過についての実験式を誘導し、次に実際の炉水漏出事例を参考に、炉水中放射

性 Co の砂層中漏出時の評価方法を検討する。

II. 実験方法

日本原子力研究所 JPDR 付近の地下 3 m より土壌(砂)を採取した。この付近一帯の砂は海岸砂であって、その化学組成は、SiO₂: 63.00, Al₂O₃: 8.50, FeO: 3.30, Fe₂O₃: 3.53, Na₂O: 6.21, K₂O: 5.41 %等である⁽⁵⁾。また、砂のモード径は420~350 μm, 平均密度は2.63 g/cm³⁽⁶⁾、Co²⁺イオンについてのイオン表面吸着量は $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{eq}/\text{cm}^2$ である⁽⁶⁾。採取した砂を自然の砂層と同じ空隙率40%で直径5.5 cmのプラスチック製カラムに30と60 cmの厚さに充填し、垂直に設置して通気層を模した(第1図参照)。実験に使用し

* 日本原子力研究所 保健物理部 (Div. of Health Phys., Japan At. Energy Res. Inst.)

** 日本原子力研究所 環境安全研究部 (Div. of Envir. Safety Res., Japan At. Energy Res. Inst.)

た炉水はJPDRの1次冷却水で、常時浄化脱塩装置により浄化されており、pHは約7、放射能濃度は ^{60}Co : 3.6×10^{-5} , ^{58}Co : $1.3 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/ml}$ であり、その他の核種は検出されなかった。

第1図 砂層カラムによる炉水流下実験装置

実験は空隙率40%、30~60cm砂層カラムにおける自然流下速度に対応する速度 $5 \times 10^{-2} \text{cm/sec}$ で炉水10~100 lをカラムに流下し、流出液を一定量ごとに採取してそれぞれに含まれる放射能を測定した。さらに流下実験終了後カラム内砂層を所定の厚さごとに分取し、それぞれに含まれる放射能を測定した。以上の測定はすべて5"φ×4"NaI(Tl)波高分析器で行なった。

Ⅲ. 実験結果

まず対照実験として、放射性物質が明らかにイオン状である場合の挙動をみるため、pH3の $^{60}\text{CoCl}_2$ 水溶液($8.6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$)を炉水流下実験と同条件で流下した結果を炉水の結果とともに第2図に示す。この図は透過比*と流下流量との関係を示すもので、 $^{60}\text{CoCl}_2$ 水溶液の場合、流下流量が5 lまで透過比はほとんどゼロで、5 lを過ぎると増加し始めていわゆる破過現象を示した。

一方、炉水の場合 ^{60}Co と ^{58}Co の透過比はおおの0.07, 0.14とはば一定の値を示した。さらにこの関係は流下流量が100 lに増加しても変わらなかった。以上のように、炉水中の放射性Coの砂層による捕集機構は、透過比が流下流量に無関係に一定値を示し、明らかにイオン状放射性物質の捕集とは異なる**。

第2図 30cm砂層カラム炉水流下実験における透過比と流下流量の関係

って、実験に使用した炉水中放射性Coは非イオン状であると考えられる。

一定量流下後砂層を所定の厚さに分取しおのおのの砂層中の放射能を測定した結果を第3図に示す。この図は砂層表面1cmの砂層中放射能に対する各層の放射能の割合を放射能比として砂層の厚さとの関係を示したものである。炉水の場合、 ^{60}Co と ^{58}Co の砂層中分

第3図 炉水流下実験後の砂層中放射能分布

* 透過比=流出液放射能濃度($\mu\text{Ci/ml}$)/流入液放射能濃度($\mu\text{Ci/ml}$)

** 非イオン状 ^{90}Y についても透過率は流下流量に無関係に一定となることが報告されている⁷⁾。

布は深層部分で放射能比に差が見られるが*, ともに砂層表面から約 5cm までは急激な指数関数的減少を示し, その後は緩やかな指数関数的減少を示している。すなわち, 放射性 Co の多くの部分が砂層表面層で捕集され, 残りの小部分は砂層に捕集されながら水とともに透過していくことがわかる。

一方, イオンである $^{60}\text{CoCl}_2$ 水溶液(pH 3)の場合, 10 l の流下量では破過現象が始まっている量なので(第 2 図参照), 図のように放射能比は砂層全体にわたり約 1 の値を示している。

IV. 砂層透過比を表わす実験式の誘導

以上の結果が示すように, 炉水中で酸化物あるいは金属微粒子といった, 種々の非イオン状態で存在している炉水中放射性 Co による実験結果は, $^{60}\text{Co}^{2+}$ イオンとして存在している時の結果とは異なっている。すなわち, イオン状放射性物質の地中移動を表わす場合のイオン交換反応を考慮した輸送方程式を, 炉水中放射性 Co の移動には直接適用できない。このように非イオン状態で存在する炉水中放射性 Co の砂層中移動を評価するには, イオン状放射性物質の場合とは異なった評価方法が必要である。したがって, 実験結果に基づき炉水中放射性 Co についての透過比を求める式を誘導する。砂層中放射能の分布を示す第 3 図から, 砂層表面から距離 x cm における砂層中の放射能を $q(x)$ とすると,

$$q(x) = ae^{-k_1 x} + be^{-k_2 x} \quad (1)$$

k_1, k_2 はおのおの砂層上層部の急激な減少部と, 深層部の緩やかな減少部分の傾きを示している。このとき透過比 $F(x)$ は, 次式で表わされる。

$$F(x) = 1 - \int_0^x q(x) dx / \int_0^\infty q(x) dx \quad (2)$$

$$= Ae^{-k_1 x} + Be^{-k_2 x} \quad (2)'$$

炉水による流下実験を同一条件で繰り返した結果, ^{60}Co と ^{58}Co についてともに $k_1 = 1.49$, $k_2 = 0.0405$ が得られた。また, 30cm 砂層カラム流下の場合の ^{60}Co と ^{58}Co の透過比はおのおの 0.07, 0.14 であった(第 2 図参照)。いま, $x = 30\text{cm}$ のときの(2)'式右辺第 1 項は第 2 項に比して無視できることから, ^{60}Co と ^{58}Co の透過比の式, $F(x)^{60\text{Co}}$ および $F(x)^{58\text{Co}}$ はおのおの(3), (4)式で表わされる。

$$F(x)^{60\text{Co}} = 0.754e^{-1.49x} + 0.246e^{-0.0405x} \quad (3)$$

$$F(x)^{58\text{Co}} = 0.528e^{-1.49x} + 0.472e^{-0.0405x} \quad (4)$$

砂層の厚さ 60cm について実験を行なったところ, ^{60}Co

と ^{58}Co の透過比はおのおの 0.023, 0.048 となり, (3), (4)式による計算値は $F(60)^{60\text{Co}} = 0.021$, $F(60)^{58\text{Co}} = 0.042$ とよい一致を示した。

(3), (4)式によると, 砂層の厚さが 1m と 5m の場合の透過比は, ^{60}Co についてはおのおの 4.3×10^{-3} , 3.9×10^{-10} , ^{58}Co についてはおのおの 8.2×10^{-3} , 7.5×10^{-10} となり, 砂層による捕集の効果が大きいことがわかる。

V. 炉水漏出例と実験結果との比較

炉水漏出例として, JPDR のクリーンドレン・サンプからの漏出時の砂層中放射能の分布について述べる。クリーンドレン・サンプは鋼板内張りコンクリート槽でタービン建家の地下 6.5m にあり, サンプ周辺は砂層である。このサンプから実験で使用した炉水と同質の水が, 1964 年 4 月～1968 年 1 月に 7,500 t (放射能濃度 ^{60}Co : $4 \times 10^{-7} \sim 2 \times 10^{-6}$, ^{58}Co : $7 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/ml}$), さらに 1976 年 1～3 月に 960 t (放射能濃度 ^{60}Co : $8 \times 10^{-8} \sim 3 \times 10^{-6}$, ^{58}Co : $7 \times 10^{-7} \sim 3 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/ml}$) が漏出したと推定された。

この漏出現場の状況を調べた結果, 漏出水はクリーンドレン・サンプ内張り鋼板およびコンクリート槽側壁の欠陥を通じて地下層に達し, 漏出箇所の空洞の約 4.5m^2 に一様に拡がり下方に流れたと推定された(第 4 図参照)。このときの砂層の放射能分布を第 5 図**に示す。

第 4 図 クリーンドレン・サンプ漏出箇所の概略図

* ^{60}Co と ^{58}Co の透過比や砂層放射能比の差異は, おのおの生成過程の違いや, 半減期の差による浄化脱塩装置の処理歴の違いに起因した差異が原因と考えられ, 同位体効果を意味するものではない。

** 解体調査中砂層表面部が攪拌されたため, 第 5 図の表面部については測定できなかった。

第5図 クリーンドレン・サンプ漏出
による砂層中放射能分布

漏出箇所の砂層中放射能分布は深さに従って指数関数的減少を示しており、カラムによる実験結果(第3図の炉水の場合)の深層部の分布に対応している。第5図より k_2 を求めると ^{60}Co , ^{58}Co ともに $k_2=0.059$ となり、一方、実験では $k_2=0.0405$ でありほぼ一致している。以上のことから、非イオン状放射性物質を含む炉水漏出の場合には、ここで導入した透過比の式による放射性物質の地中(砂層中)移動についての計算が、評価の目安となるものと考えられる。

Ⅶ. 結 言

本報では、炉水が漏出した場合の漏出放射性物質による環境汚染評価について述べた。実験結果および実

際の漏出例からわかるように、非イオン状である炉水中放射性 Co の場合の砂層中の移動については、これまでの地中移動評価に用いられてきたイオン交換反応を考慮した輸送方程式は使用できない。本報では小規模カラム実験による結果から、放射性 Co の砂層中透過比についての実験式を導出し、さらにこれが実際の漏出時の汚染評価の場合の目安となることを示した。この透過比の式をより一般化させるには、土質、放射性物質の種類およびその溶存状態など多くのパラメータについて考慮した放射性物質地中移動の機構の解明が必要である。評価方法が一般化されていない現在において、炉水漏出時における環境汚染の事前評価では、本報で述べたような小規模実験を行なって透過比の式を求めておくのも一方法であろう。

最後に本実験の遂行にあたっては、日本原子力研究所保健物理部放射性汚染処理課 加藤 清氏および環境安全研究部廃棄物処理処分研究室 武部慎一氏に協力して頂いた。また、クリーンドレン・サンプ漏出現場の調査では動力試験炉部原子炉第2課 吉田武司氏に協力して頂いた。これら諸氏のご厚意に深く感謝する。

— 参 考 文 献 —

- (1) INOUE, Y., KAUFMAN, W.J.: *Health Phys.*, 9, 705 (1963).
- (2) 岩井重久, 他: 本誌, 10[8], 435 (1968).
- (3) 井上頼輝, 他: 本誌, 17[7], 376 (1975).
- (4) 筒井天尊, 西牧研社: 土木学会論文報告集, 200, 25 (1976).
- (5) 会川英昭, 古平 登: *JAERI-memo* 3218, (1968).
- (6) 原研未公開資料, (1977).
- (7) 井上頼輝, 他: 本誌, 18[7], 445 (1976).

◇原子力構造機器の材料・設計・施工・検査講習会◇

主 催 日本溶接協会, 後 援 本会ほか

と き 3月14日(火)~15日(水)

開催趣旨 最近の原子力平和利用委託研究の成果を含めた原子力構造機器の材料・設計・施工・検査に関する新界の権威を講師として開催する。

と ころ 自動車会館大会議室

(〒100 東京都千代田区九段南4-8, Tel. 03-264-7794)

定 員 100名(所定申込書で2月28日申込順締切)

聴講料 35,000円(資料, テキスト代, 昼食代を含む)

問合せ・申込先 (〒101) 東京都千代田区神田佐久間町1-11
産報佐久間ビル (Tel. 03-253-0581~3)
日本溶接協会原子力研究委員会

本会協賛の「第1回アコースティック・エミッション総合コンファレンス」は、12月8, 9日の両日130名の参加を得て、27件の講演、パネル討論、商業発表などを行なって盛況裡に終了しました。なお予稿集(174頁)は、日本高圧力技術協会(03-255-3486~7)から入手できる。