放射性コバルトの砂層中移動

大貫敏彦*, 和達嘉樹*

(1984年 7月9日 受理)

Migration of Radioactive Cobalt through Sandy Soil Layer

By Toshihiko OHNUKI and Yoshiki WADACHI

KEYWORDS: radionuclide migration, cobalt 60, soil, hydroxide, pH value, waste management, low level radioactive wastes, safety assessment

1. 緒言

低レベル放射性廃棄物の陸地処分の安全評価上, 放射性核種の地中移動について検討する必要がある。原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種の主なものは, ^{60}Co である。 ^{60}Co イオンは溶存状態が酸性度(pH)に影響されるため, 地中における挙動が正確に把握されていない。

一般に, 低レベル放射性廃棄物はセメント固化されるものが多いが, それら廃棄物固化体を浅地中に処分した場合, 廃棄物固化体からの浸出液の pH はアルカリ側になると考えられる。これまでの報告では, ^{60}Co イオンは砂層中移動において, 水溶液の pH の影響を受けること⁽¹⁾⁽²⁾, 中性付近における ^{60}Co の移動は幾つかの移動部分⁽³⁾に分けられることなどが明らかにされている。

以上のように, ^{60}Co の移動について定性的に検討した報告はあるが, 遅延係数(Retardation factor)を求めるなどの定量的な検討例はほとんどない。本報は, ^{60}Co の砂層中移動における Retardation factor について, pHを考慮して定量的に検討するものである。

2. 実験方法

実験に使用した砂は, 日本原子力研究所東海研究所敷地内(海岸より100 m, 深さ1 m)で採取した海岸砂である⁽⁴⁾。採取した海岸砂を乾燥器により105°Cで4 h乾燥した後, 標準ふるいを用いて粒径が1.68 mm以上の砂礫等を取り除き, さらに水洗いすることによって, 土壌微細粒子(シルト)を取り除いて調整砂を得た。

実験に用いたカラムは, 塩化ビニール製で内径5 cm, 高さ25 cmである。砂層は, 調整砂を砂層深さ15 cm, 空隙率40%となるように秤量し, カラム内に充填して

形成した(Fig. 1 参照)。

実験に用いた ^{60}Co は $^{60}\text{CoCl}_2$ で, 日本アイソトープ協会より購入したものである。 ^{60}Co 水溶液の pH の調整は, アルカリ性水溶液には NaOH を, 酸性水溶液には HCl をそれぞれ加えて行い, pH 12 および 3 とした。 ^{60}Co 水溶液の放射能濃度は, $2.1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/ml}$ である。この際, ^{60}Co には特に担体を加えずに用いている。

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

^{60}Co 水溶液の砂層中への流下実験は, Fig. 1 に示した装置により以下のようにして行なった。すなわち, 脱イオン水(以下, 水)をマイクロチューブポンプにより砂層表面中心部に 16.7 ml/min の供給流量で定常流になるまで流下する。次に, ^{60}Co 水溶液を同じ供給流量で 200 ml 流下する。さらに, 水を同じ供給流量で 3,800 ml 流下する。この場合の水流速は, 中性子透過法により測定した結果⁽⁵⁾ 4.2 cm/min であった。

^{60}Co の砂層中における移動を測定するため, カラム下部より流出液を 50 ml あるいは 250 ml 間隔で採取した。さらに, 流下実験終了後にカラムを解体して, 砂層を 1 cm 間隔で採取した。採取した水試料および砂試料に含まれる ^{60}Co の放射能を, ORTEC 社製 Ge 半導体波高分析装置により測定した。得られた ^{60}Co の流出曲線および濃度分布は, 流入液の濃度で除して規格化している。

3. 結果および考察

Fig. 2 は, pH 12 および 3 の ^{60}Co 水溶液を砂層に流下した場合の ^{60}Co の砂層からの流出曲線である。

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

Fig. 2 Relative effluent curves of ^{60}Co from sandy soil layer at pH 12 and 3

Fig. 3 Relative concentration distribution curves of ^{60}Co in sandy soil layer at pH 12 and 3

Fig. 3 は、水溶液を流下した後の、それぞれの pH 条件における砂層中 ^{60}Co 濃度分布である。

Fig. 2 に示される pH 12 における ^{60}Co の流出曲線から、 ^{60}Co は流下の初期から流出を開始し、流出液量が 250 ml となる地点で最大となり、その後徐々に減少するが流出し続ける。また、Fig. 3 に示される pH 12 における ^{60}Co の砂層中濃度分布より、 ^{60}Co はほぼ砂層全体に様に分布している。一方、Fig. 2 に示される pH 3 における ^{60}Co の流出曲線より、 ^{60}Co は流下の初期から相対濃度が 10^{-4} 程度とわずかではあるが、流出を開始し、その後もほとんど同じ濃度で流出し続ける。また、Fig. 3 に示される pH 3 における ^{60}Co の砂層中濃度分布より、 ^{60}Co の濃度分布は深さ 7 cm で最大となる結果が得られている。これは、砂層に流下された ^{60}Co がクロマト的に水とともに移動したためと考えられる。

これらのことから、pH 12 において、 ^{60}Co は速い速度で砂層中を移動していることがわかる。一方、pH

3 においては、 ^{60}Co のほとんどの部分が砂層にとどまることがわかる。

これらのことは従来から指摘されているように αCo , $^{60}\text{Co}^{2+}$ イオンはアルカリ性の水溶液中では、加水分解を受け水酸化物 $^{60}\text{Co}(\text{OH})_2$ となり、イオン交換反応をせずに砂層中を移動するためと考えられる。

以上の事実を考慮して、放射性核種の地中移動を支配する拡散輸送方程式により、 ^{60}Co の砂層中移動における Retardation factor および拡散係数の値を求める。

均質で等方性の砂層中における放射性核種の 1 次元移動を表わす方程式は、(1) 式で与えられる⁶⁾。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{R_d} \left(D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - V \frac{\partial C}{\partial z} \right) \quad (1)$$

ここに、 C : 放射性核種の間隙水中濃度 (Ci/cm^3)

R_d : Retardation factor

D : 拡散係数 (cm^2/min)

V : 水流速 (cm/min)

Z : 深さ (cm)

Retardation factor および 拡散係数は, (1) 式の解と, ^{60}Co の流出曲線および砂層中濃度分布とをフィッティングすることから求められる。この際 Retardation factor および 拡散係数は, ^{60}Co の移動の中心におけるそれらを求めた。そのため, フィッティングは, pH 12 では流出曲線に対して, pH 3 では砂層中濃度分布に対して行なった。ここで, pH 3 における ^{60}Co の砂層中濃度は, (2) 式により得た。

$$Q = C \left(1 + \frac{(R_d - 1) \theta}{\rho} \right) \quad (2)$$

ここに, Q : 放射性核種の砂層中濃度 (Ci/g)

ρ : 砂のかさ密度 (g/cm^3)

θ : 水分率 (cm^3/cm^3)

実験における初期条件および境界条件は,

初期条件;

$$t < 0, Z \geq 0 \text{ において } C = 0,$$

境界条件;

$$0 \leq t \leq 12 \text{ min}^*, Z = 0 \text{ において } C = 1$$

である。

(1) 式を差分法 (Clank-Nicolson, S.O.R. 法) により解いて得た ^{60}Co の流出曲線および砂層中濃度分布と, 実験により得られたそれらとのフィッティングから求めた Retardation factor と 拡散係数の値を Table 1 に示す。計算で用いたパラメータの値は $\rho = 1.59 (\text{g}/\text{cm}^3)$ および $\theta = 0.3 (\text{cm}^3/\text{cm}^3)$ である。

Table 1 Values of retardation factors and dispersion coefficients of ^{60}Co at pH 12 and 3

pH	Retardation factor	Dispersion coefficient (cm^2/min)
3	150	2.9
12	2.5	2.9

Table 1 より, pH 12 および 3 における 拡散係数の値は同じである。しかし, Retardation factor の値を比較すると, pH 3 における値は pH 12 における値の 60 倍であることがわかる。したがって, pH 12 における ^{60}Co は, pH 3 におけるそれよりも, 60 倍の速度で砂層中を移動する。

このことから, ^{60}Co がアルカリ性水溶液として廃棄物固化体から浸出するような場合に対しては, イオンとして溶存している ^{60}Co の Retardation factor の値により地中移動を予測することは, 安全評価上危険側の結果となる。このため, 陸地処分安全評価を行う場合には, 廃棄物固化体から浸出する溶液の酸性度を考慮して, その条件における Retardation factor を求めなければならない。

4. 結 言

廃棄物固化体から浸出する放射性溶液の pH を考慮して, アルカリ性および酸性下における ^{60}Co の砂層中移動について検討した。その結果, pH 3 における Retardation factor の値は, pH 12 におけるそれよりも 60 倍大きいことが明らかとなった。このことは, 陸地処分の安全評価上, 廃棄物固化体から浸出する放射性溶液の酸性度に対応する Retardation factor を用いる必要があることを示唆したものである。

— 参 考 文 献 —

- (1) 武部慎一, 松鶴秀夫, 和達嘉樹: *JAERI-M* 7642, (1978).
- (2) 武部慎一, 和達嘉樹: *JAERI-M* 8044, (1979).
- (3) 大貫敏彦, 他: 保健物理, **19**, 13 (1984).
- (4) 大貫敏彦, 和達嘉樹: 原子力誌, **25**(6), 486 (1983).
- (5) 大貫敏彦, 山本忠利: 応用物理, **52**, 268 (1983).
- (6) GENUCHTEN, M.-T.H., CLEARY, R.W.: *Soil Chem., B. Phys.-Chem. Models*, (BOLT, G.H., ed.), p.349 (1979), Elsevier, Amsterdam.

* ^{60}Co 水溶液は 16.7 ml/min の供給流量で 200 ml 流下したので, 流下時間は 12 min となる。

「放射線安全管理講習会」のご案内

主 催 科学技術庁, 放射線障害防止中央協議会
(財)放射線安全技術センター

放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律の施行状況をはじめ, 放射線安全管理と労働安全衛生法について並びに 放射性同位元素等 使用事業所における使用・保管・廃棄の記帳についてそれぞれ紹介し, 各関係 事業所における放射線の安全確保に関する 認識の高揚, 対策の徹底に資することを目的とする。

	期 日・場 所	申 込 期 限
第29回(東京地区)	10月29日(月) 日本教育会館	(10月26日)
第30回(札幌地区)	11月2日(金) 北海道建設会館	(10月30日)
第31回(福岡地区)	11月6日(火) 電気ホール	(11月2日)

第32回(大阪地区) 11月8日(木) 国民会館 (11月5日)
第33回(名古屋地区) 11月9日(金) 名古屋市公会堂(11月6日)
講演題目(各会場共通)

- (1) 放射線障害防止法の施行状況
 - (2) 放射線安全管理と労働安全衛生法
 - (3) 放射性同位元素等使用事業所(民間事業所, 病院・医療機関, 教育・研究機関)における非密封 RI の使用・保管・廃棄の記帳
 - (4) (財)放射線安全技術センターの指定事業遂行状況
- 参加費 8,000円(テキスト代含む)

問合・申込先
(〒112)東京都文京区白山5-1-3-101 東京富山会館ビル
放射線安全技術センター業務部(03-814-7481)