海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究 (第6報)*

モルタル試料の透水および拡散 (2)

佐々木忠義** 岡崎守良*** 渡辺精一***
大柴五八郎*** 岸野元彰*** 竹松伸***

Studies on the Container for Disposing Radioactive Wastes into the Sea - VI

— On the Permeability and Diffusion in Mortar (2) —

Tadayoshi SASAKI, Moriyoshi OKAZAKI, Seiichi WATANABE,
Gohachiro OSHIBA, Motoaki KISHINO and Noburu TAKEMATSU

Abstract: This investigation belongs to series of the studies on the above title and is a serial report of the experimental research on the diffusion of solute in mortar samples. In case, where the concrete containers are deposited on the deep-sea floor over a long period, it is feared that the water-soluble radioactive wastes may leak out through the pores of concrete container by action of the molecular diffusion, and contaminate the surrounding sea water. In order to investigate this problem, studies were carried out on the diffusion in mortar wall and diffusion coefficients were determined.

The result of radioactive iodide ion I-131 coincided nearly with that of chloride ion in the previous report, and between diffusion coefficient (D) and coefficient of permeability (P) of I-131 it was observed that D is proportional to $P^{0.5}$ in the same manner as in case of chloride ion. This proportional relationship was discussed in view of physics.

Regarding radioactive zinc, Zn-65, on the other hand, we could not catch an evidence of the diffusion in mortar samples, although diffusion tests were carried out in very porous mortar samples for a long period. These phenomena may be effectively attributed to the colloidalization of Zn-65 ion in mortar. The experiments forcing $ZnCl_2$ solution into mortar pores were consequently carried out and it was observed that $Zn(OH)_2$ colloid had a function choking up pores of mortar samples.

1. ま え が き

放射性廃棄物の安全な投棄の問題について、貯蔵、投棄箇所、投棄の方法等多くの研究があり、海洋に関しては低放射性廃棄物を希釈して海中に放出するとか、高放射性廃棄物は安全な容器に入れ深海底に投棄する等の方法が行なわれている（

MAWSON, 1965)¹⁾。檜山 (1964)²⁾ や PRITCHARD (1961)³⁾ らは放射性物質の投棄によりおきる海水汚染の安全許容量について述べている。しかしいづれの場所に捨てる場合でも環境・生物の汚染を極力避けなければならない。特に深海底に高放射性廃棄物を投棄するについては、深海底に流動のあることが認められている以上長期間絶対に海水を汚染しないことを目的としなければならない。そのため深海底に投棄される放射性廃棄物は容器内に密封されるであろう。この場合に、問題は二つに分かれる。第1は容器内の放射性物質の固定

* 1966年6月30日受理

** 東京水産大学, 理化学研究所 Tokyo University of Fisheries, The Institute of physical and Chemical Research

*** 理化学研究所 The Institute of Physical and Chemical Research

の問題、第2は水溶性の放射性物質に対する容器の密封性の問題である。この他に容器の強度の問題があるが、ここでは考えない。第1の問題は放射性イオンの水に対する固定度の問題であって、海洋投棄以外の方法を採用している各国においても多くの研究がなされている。たとえばガラスに融かしこむ方法 (ELIASSEN, 1964⁴⁾; MERRITT and PARSONS, 1964⁵⁾) があり、放射性核種がガラスから周囲の水に溶ける溶出量は少なくして投棄後の安全度は高いが、作業時に高温を要し、高価につくことが難点である。セラミックス・スポンジを放射性廃棄物の溶液に数回浸して吸着させた後に焼きこむ方法 (MAWSON)¹⁾ もある。核分裂生成物を水酸化物にしてセメントで固める方法 (BUTT *et al.*, 1964)⁶⁾ は作業が簡単かつ安全であり、実際に貯蔵や低放射能廃棄物の海中投棄に使用されている (MAWSON)¹⁾。また単に核分裂生成物をそのままセメントと共に固化した塊から周囲の水へ溶出する量の測定が行なわれている (LAZZARINI, 1963)⁷⁾。

第2は容器の密封性、内外の遮断性の問題であるが、上述のごとく放射性廃棄物の固化体から少しでも溶出があれば、海水の汚染を防ぐために容器の壁の不透性が重要となる。放射性廃棄物の溶液の貯蔵槽には一般にコンクリートに鋼鉄板を併用しているが、深海底では被覆鉄板は容易に腐食するので、結局コンクリートの容器壁の不透性の問題に帰する。このようなコンクリートまたはモルタルの壁内における放射性イオンの浸透・拡散について幾つかの報告がある。たとえば CERRIE (1960)⁸⁾ は放射能高度汚染物をつめた厚さ 16 cm のコンクリート容器からまわりの水に対し一年の間、放射性イオンによる汚染が何ら無かったと報告しているが、他に広瀬ら (1963)⁹⁾ は厚さ 10 cm のコンクリート槽を用いて放射性溶液の貯蔵実験をし、コンクリート壁内に放射性イオンが浸透することを認めている。前述の LAZZARINI は核分裂生成物の溶液を用いてモルタル壁内における放射性イオンの拡散実験を行ない拡散すると報告しているが、これらはコンクリートまたはモルタル壁内における放射性イオンの拡散速度、あるいは

拡散係数を算出していないので安全性の評価ができない。

本報告は上に述べた内の2番目のモルタル壁内における放射性イオンの拡散に関する研究である。著者らはこれまでに放射性廃棄物容器の海洋投棄に関して次のような一連の研究を行なってきた。容器の材料にはモルタルを使用して、そのモルタル容器の水圧に対する強度と被覆鉄板の腐食の研究 (第1報)¹⁰⁾、モルタル容器の深海底への安全到達に関する研究 (第3報¹¹⁾、第4報¹²⁾) などである。すなわち放射性廃棄物をつめた容器が無事に海底に到達することは、この報告の前提条件である。第2報¹³⁾ において塩素イオンを使用しモルタル壁内のイオンの拡散性を調べ、モルタル壁の透水性と対比した実験結果を報告した。すなわち塩素イオンに関する限りモルタル壁内の拡散を無視することができないと結論した。この報告はこの第2報に続く研究で、放射性イオンを用いて、第2報と同様モルタル壁内のイオンの拡散実験を行なった。放射性イオンとして Zn-65 を ZnCl_2 溶液の形で、I-131 を NaI 溶液の形で拡散実験に使用した。

2. 海洋投棄と室内実験との関係

この報告でとり扱うモルタル壁内の拡散実験が実際の海洋投棄をどのようにモデル化しているかについて考える。

実際の放射性廃棄物容器はコンクリートのまわりを鉄板で覆う予定であるから時間的に多少ずれるとしても第1報に述べているように鉄板の腐食のためにやがてコンクリート容器面が直接海水にふれるようになる。深海底の高水圧の下では海水は容易にコンクリート容器内部へ浸透する。その結果、容器のコンクリートの細孔を通じて容器内外の水がつながり容器内外の圧力差が消失するから、水溶性の放射性廃棄物は濃度差のため外部へ分子拡散し、遂には周囲の海水を汚染することが考えられる。この状態を実験室において再現するために、モルタル円板に加圧して水を透水しモルタル内に水の通り路を作り、その後常圧の下で拡散実験を行なった。これが透水実験を拡散実験の

Table 1. Cement percentage and several constants of mortar samples. Proportion is equal to Table 1 in the 2nd report.

Mortar sample number	Cement percentage weight %	Curing age days	Bending strength kg/cm ²	Compressive strength kg/cm ²	Thickness cm
4—7	10	135	12.3	26.25	4.3
4—8	"	42	13.92	30.0	2.7
4—9	"	35	10.06	10	2.3
4—10	"	50	11.87	7	3.2
4—12	"	46	13.24	42.0	2.7
4—13	"	59	14.94	48.75	2.7
4—14	"	210	13.27	42.0	2.8
4—15	"	219	15.16	39.0	3.2
4—16	"	38	12.97	32.0	3.0
4—17	"	70	13.10	31.0	2.3
4—18	"	134	13.52	39.0	2.7
4—19	"	155	13.70	44.3	2.6
4—20	"	40	11.65	42.3	3.5
4—22	"	63	10.9	30	2.5
4—23	"	63	12.2	41.5	2.3
4—24	"	68	14.2	40.5	2.6
4—26	"	82	13.03	39.8	3.3
4—27	"	83	15.55	48.59	3.5
3—6	15	166	32.9	110	5.6
3—7	"	34	23.55	79.37	9.5
3—8	"	62	25.51	105	2.8
3—9	"	186	25.51	105	3.3
3—10	"	181	33.40	129	2.5
3—11	"	198	33.10	141	2.4
3—12	"	26	28.61	117.5	3.2
3—13	"	133	28.95	133	3.2
3—14	"	146	23.90	135.7	3.2
3—15	"	195	27.80	135.8	3.1
2—4	20	175	46.66	205.0	10.7
2—6	"	64	45.2	200	2.4
5—2	23	60	60.6	339.3	7.8
5—3	"	186	63.50	332.5	9.4
1—12	27	181	74.50	396.25	9.5
1—15	"	21	63.20	290.0	3.2

前に行なう手続きの理由である。

また、拡散実験に対する透水実験の必要性は次に述べる面からも重要である。各種モルタルの拡散実験の結果を総合する際に、モルタルの特性として何が妥当かという問題がある。たとえば同一の配合・製作方法により作られたモルタルでも強度等各種特性に相当の変動がみられることはよく経験するところである。ところでこの実験において最も重要なのはイオンの通り路になる所のモルタル内の各細孔の大きさ（断面積）である。したがって、モルタルの各種特性の中からモルタル内の細孔の断面積に関係の深い特性として透水係数を選んだ。これによって製作条件や配合が異なってもモルタル内細孔の断面積の等しいモルタルはすべて同じ透水係数により表わされるから、有効拡散係数に対して透水係数を採ることが最も適当であると考えた。細孔の分布はモルタル内で均一と考えてこれを考察していない。

更に透水係数は土木工学関係において一般にとり扱われているし、実際の測定も有効拡散係数に比べて行ないやすい。したがって、この両係数の関係が求められていれば、実験の容易な透水実験から有効拡散係数の推定ができる。このことはち密なコンクリートにおいては特に有効な手段である。以上のような理由から、拡散実験に対応して透水実験を行なった。なお、容器内の放射性廃棄物から出る放射線により起きる加熱と、その容器への影響は考慮していない。

3. 実験の装置と方法

1) モルタル試料の製作は、塩素イオンをトレーサーに用いた第2報の実験と全く同じである。モルタル試料は円板形（直径 28 cm, 厚さ 2.3~10.7 cm）で5種類の配合（セメント、砂、水の比）を作った（Table 1）。拡散実験および透水実験の装置は第2報に示したものをそのまま使用した。実験順序は次の通りである。透水実験はモルタル試料を水平に固定し、上端面に水压を加えてモルタル内を透過する水の量を測定した。透水実験を終了したモルタル試料を引き続き拡散実験に使用した。拡散実験はモルタル試料を鉛直に立てた状

態に固定し、それを境として一方の水槽に放射性物質水溶液（以下水溶液と略す）、他方の水槽に純水を満たして行なった。モルタル試料内で分子拡散力以外の力が作用しないように、両水槽の水位を等しく保った。1日1回定量を両水槽より採水し、水の比放射能を測定した。水溶液の比放射能は I-131 の場合約 $1\mu\text{c}/\text{ml}$, Zn-65 の場合約 $0.5\mu\text{c}/\text{ml}$ とし、各々にキャリアーとして KI 40 mg/ml, ZnCl_2 5 mg/ml を加えて実験を行なった。放射能の測定は自然係数を少なくするため、厚さ 10 cm の鉛のシールド内において行ない、直径、高さ共に 2.5 cm の NaI の結晶のシンチレーション・ヘッドを使用した。計数には計数率計 (Rate-meter) と計数器 (Decatron tube counter) を併用した。比放射能が小さく $0.2\sim 5\text{ cpm}/\text{ml}$ 程度の時は計数器の記録値を採用し、 $50\sim 10^4\text{ cpm}/\text{ml}$ の時は計数率計の記録値を採用した。拡散実験においてモルタル試料と装置の間隙に原因する「洩れ」の無いことを確めるために実験終了後に次の測定を行なった。円板形のモルタル試料の中央部を厚さの方向に3部分に分け、水溶液側、純水側およびその中間部のモルタル粉の比放射能を測定した。その値の勾配から純水側の水の比放射能の増加が装置の間隙からの洩れによるのではなく、モルタル細孔内の拡散によることを確認した (Table 2)。

Table 2. Several examples of the rate of radioactivities in three parts of mortar samples. i.e. radioactive solution side, Fresh water side and central part.

Mortar sample number	Freshwater side	Central part	Radioactive solution side
4-10	1	2.8	4.5
4-12	1	4.8	6.8
4-15	1	1.8	2.4
3-8	1	3.9	5.5
3-10	1	2.6	6.1
3-11	1	6.6	13.4

2) 透水係数

透水実験から得られた透水量と、一次元の流れに関する DARCY の式により透水係数を計算した(第2報と同じ)。

$$\frac{Q}{A} = P \cdot \frac{H}{L} \quad (1)$$

ここに P は透水係数 (cm/sec), Q は単位時間当りの透水量 (cm³/sec), A は透水方向に垂直なモルタルの断面積 (cm²), H は水頭 (圧力) 差 (cm),

および L はモルタル試料の厚さ (cm) である。透水係数 P の値は Table 3, Table 4 に示す。

3) 有効拡散係数

まず得られた拡散実験の結果を述べる。Fig. 1 に一般的な純水側の水の比放射能の増加の例としてモルタル番号 (4-19) を示す。縦軸に測定した比放射能の換算値をとり、横軸に実験日数をとった。(実験期間中の放射能減衰を考慮して、比放射能の測定値をすべて実験第1日の値に換算し

Table 3. Results and conditions of permeability test and diffusion test, where I-131 was used as tracer.

Mortar sample number	Pressure at permeability test g/cm ²	Coefficient of permeability P cm/sec	Nuclide	Radioactive intensity $\mu\text{C}/\text{ml}$	Interval of diffusion test days	Diffusion coefficient D cm ² /sec
4-9	20	3×10^{-6}	I-131	1.0	22	1.7×10^{-8}
4-12	2	1.5×10^{-5}	"	"	12	1.0×10^{-7}
4-14	2	1×10^{-5}	"	"	20	6.5×10^{-8}
4-15	4	4.0×10^{-6}	"	"	21	9.4×10^{-8}
4-18	15	9.6×10^{-7}	"	"	20	1.8×10^{-8}
4-19	10	4×10^{-7}	"	2.0	17	2.2×10^{-8}
4-24	30	6×10^{-7}	"	1.0	21	2.7×10^{-8}
4-27	280	4×10^{-8}	"	"	22	8.7×10^{-10}
3-8	300	1.5×10^{-8}	"	"	27	1.5×10^{-9}
3-9	97	1×10^{-8}	"	"	28	2.1×10^{-9}
3-10	130	6×10^{-8}	"	"	16	2.8×10^{-9}
3-11	310	3.5×10^{-8}	"	"	23	1.6×10^{-9}
3-12	80	1×10^{-8}	"	"	"	1.0×10^{-9}
3-13	30	9.4×10^{-8}	"	"	18	5.9×10^{-9}
3-15	298	6×10^{-8}	"	"	16	9.2×10^{-10}
2-4	2.5×10^4	2.5×10^{-9}	"	"	26	1.5×10^{-9}
2-6	1.36×10^2	9.8×10^{-9}	"	"	23	3.7×10^{-10}
5-2	1×10^3	5.4×10^{-10}	"	0.2	6	Impossible to detect
5-3	3.5×10^4	7×10^{-10}	"	1.0	52	"
1-12	2.5×10^4	4×10^{-10}	"	"	27	"
1-15	6.8×10^2	3×10^{-9}	"	0.5	18	"

Table 4. Results and conditions of permeability test and diffusion test, where Zn-65 was used as tracer.

Mortar sample number	Pressure at permeability test g/cm ²	Coefficient of permeability P cm/sec	Nuclide	Radioactive intensity $\mu\text{C}/\text{ml}$	Interval of diffusion test days	Diffusion coefficient D cm ² /sec
4-7	20.5	1.3×10^{-5}	Zn-65	0.05	12	Impossible to detect
4-8	35.0	8.0×10^{-6}	"	0.1	24	"
4-16	3.0	2.3×10^{-5}	"	0.5	22	"
4-17	"	"	"	0.3	76	"
4-20	15.0	1.5×10^{-5}	"	0.5	32	"
4-23	30.0	1.0×10^{-6}	"	"	21	"
4-26	270.0	3.2×10^{-7}	"	"	28	"

Fig. 1. An example of the day to day variations in radioactivity of Fresh water, (mortar sample number 4-19).

た.) このモルタル (4-19) はセメント百分率は 10%, 多孔性で透水係数 $P=4 \times 10^{-7}$ (cm/sec) であって, 実験開始後純水側の水の比放射能はほとんど一定の増加率を示している. モルタル試料によっては実験初期において増加曲線が凸形または凹形を示すものもあるが, いずれも増加率が一定になった時の値を用い有効拡散係数を計算した. この外透水係数 $P=10^{-9}$ (cm/sec) 程度のち密なモルタル (2-4) は実験開始後 10 日を経て初めて純水側の比放射能の増加を示した.

拡散実験より得られる純水側の水の比放射能の増加量と拡散の式からモルタル内の有効拡散係数を計算した. 本実験では水の比放射能の測定がモルタル試料両端面の 2 か所に限られるので, 有効拡散係数は第 2 報と同じく次の式により計算した.

$$dF = D \cdot \frac{C_0 - C_L}{L} \cdot A \cdot dt \quad (2)$$

ここで dF は拡散量 (g), D は有効拡散係数 (cm^2/sec) (厚さ L cm の間の平均値), L はモルタル試料の厚さ (cm), t は時間 (sec), C_0 と C_L は溶液側および純水側の濃度 (比放射能) (g/cm^3), A はモルタル試料の断面積 (cm^2) である. dt 時間に純水側の濃度が $C_L \rightarrow C_L + dC_L$ まで増加すると, 拡散量 dF は

$$dF = V \cdot dC_L = l \cdot A \cdot dC_L \quad (3)$$

である. ここで V は純水側の水槽の容量 (cm^3),

l は純水槽の長さ (cm) である. したがって (2) 式は次のようになる.

$$\frac{dC_L}{dt} = \frac{D}{l \cdot L} (C_0 - C_L) \quad (4)$$

$$D/l \cdot L \equiv D' \text{ とおくと} \quad (5)$$

$$\frac{dC_L}{dt} = D' \cdot (C_0 - C_L) \quad (6)$$

のように C_L に関する式になる. 実験結果の Fig. 1 は, $C_L = f(t)$ の解曲線であるから, (6) 式の左辺は解曲線の勾配であり, また右辺に測定濃度を入れて D' すなわち有効拡散係数 D を計算できる. 求めた有効拡散係数を実験条件等と共に, Table 3 にまとめた. なお, モルタル試料の厚さはモルタル内細孔の長さを取り, また断面積は有効断面積をとらなければならないが, ここでは考慮していない.

4. I-131 について

1) 実験結果

透水と拡散の両実験の結果を Table 3 および Fig. 2 にまとめた. Fig. 2 の点はおおむね直線的に分布している.

Fig. 2. The experimental relation between coefficient of permeability and diffusion coefficient of radioisotope I-131 in mortar.

Table 3 に示したように, 透水係数の非常に小さいモルタル試料は拡散を検出できなかったため Fig. 2 には表わしていない.

2) 考察

今回の I-131 を用いた実験結果を第 2 報の塩素イオンの実験の結果に重ねて Fig. 3 に表わし, 考察も塩素イオンと比較して進める. Fig. 3 にお

Fig. 3. The experimental relations between coefficient of permeability of chloride ion and radioisotope I-131 in mortar.

The mark of ● indicates diffusion coefficient calculated from the chlorinity decrease of NaCl solution and the mark of ○ indicates from the chlorinity increase of Fresh water, for the same coefficient of permeability. The mark of ⊙ indicates diffusion coefficient with which the result from NaCl solution coincides that from Fresh water. The mark of △ indicates diffusion coefficient of radioisotope I-131 calculated from radioactivity increase of Fresh water. The chain lines indicate the distribution limits of the values, and the full line does the deducible coefficient of terminal value of diffusion coefficient for each permeability.

いて I-131 の分布をみると透水係数が $P > 10^{-7}$ (cm/sec) の範囲のモルタル試料は塩素イオンの傾向に一致し、透水係数が $P < 10^{-7}$ (cm/sec) の範囲のモルタル試料は塩素イオンの分布帯の下限の近くに分布している。塩素イオンの場合をふりかえれば、水溶液側の濃度の減少量と純水側の濃度の増加量とから、二つの有効拡散係数を計算したが、透水係数が $P < 10^{-7}$ (cm/sec) の範囲のモルタル試料は二つが一致しないで前者は分布の上限付近に後者は下限近くに分布した (第2報)。すなわち塩素イオンの分布の下限と I-131 については、共に純水側の濃度 (比放射能) の増加から求めた有効拡散係数であることから考えて、 $P < 10^{-7}$ において両者が一致するのは当然と考える。以上の考察から I-131 と塩素イオンはほとんど同じようにモルタル内を拡散することがわかったので、Fig. 3 から I-131 の両係数間にも $D = a \times P^{0.5}$ $a = 3.16 \times 10^{-5}$ の関係があると考えられる。この

ように両イオンに共通して見られる有効拡散係数と透水係数の比例関係について次に考察をする。

モルタルの細孔は複雑な形で連なっているが、これは単に細孔の長さの変化として効くだけであって拡散に対しても透水に対しても等しい影響をもっている。モルタル細孔内のイオンの拡散は物理的影響のほか化学的にも影響を受けるが、I-131 と塩素イオンの場合は、両係数の比例関係が拡散と透水の物理的機構の類似性に基づくと考えられる。分子拡散は濃度の差に基づくもので、液体中のイオン粒子の分子運動の結果であるがモルタル内の各細孔においても同様に細孔内の濃度 (粒子密度) の勾配に従って拡散する。そしてまたその拡散量はモルタルの有効断面積に、すなわち有効拡散係数はモルタル内の全細孔の断面積に比例する。

一方透水現象は圧力差に基づく「流れ」すなわち「細孔内の流れ」であって、「Hagen-Poiseuille の流れ」はその理想状態である。透水は「流れ」の他に「自己拡散」を含むが支配的な前者に対して後者を省略して考える。モルタルの細孔を断面の形が不規則なごく細い流管とする。また、細孔内の流速は小さいと考えられるのでモルタル細孔の壁の粗さは流れを乱すことはなく流れは細孔の中心まで層流である。したがって流れの抵抗力は分子粘性によるので「細孔内の流れ」は「広義の Hagen-Poiseuille の流れ」と考えられる。「Hagen-Poiseuille の流れ」の流量は次の式で示される。

$$q = \frac{\pi \cdot dp}{8 \cdot L \cdot \mu} r^4 \quad (7)$$

ここで q は流量、 dp は細孔両端の圧力差、 μ は分子粘性係数、 r は細孔の半径である。この式と透水の式 (1) を比べれば透水係数 P は、

$$P = \frac{\pi}{8 \cdot \mu} r^4 \quad (8)$$

と表わされる。すなわち透水係数は粘性係数に逆比例し、細孔の半径の 4 乗、すなわち細孔の断面積の 2 乗に比例する。すべての実験を通じて気温の差は余りなく粘性係数が等しいとおけるから $P \propto r^4$ としてよい。また、すでに述べたように有効拡散係数は $D \propto r^2$ の関係をもつから、両係数は

$D=a \times P^{0.5}$ の比例関係になることが説明される。

透水と拡散をこのように考えると、第2報における $P < 10^{-9}$ (cm/sec) の時に $D=P$ であろうとの推論は訂正しなければならない。すなわち「透水係数 P のいかなる範囲においても $D=a \times P^{0.5}$ の関係が成立する」ということである。Fig. 3 において折線(第2報)を直線に訂正した。

5. Zn-65 について

1) 実験結果

Zn-65 を使用した拡散実験は、透水係数が $P=10^{-4}$ (cm/sec) 程度の非常に多孔性のモルタル試料を用い、且 70 日間 (I-131 の拡散実験期間の3倍) の長期間実験を継続したが、純水側の水に全く比放射能の変化が見られなかった。Zn-65 によるモルタル試料の実験結果を Table 4 にまとめて示す。

2) 考察

Zn-65 がモルタル細孔内を拡散しにくい原因として次のようなことが考えられる。モルタルは一般に $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の結晶を主とし、 CaO , SiO_2 , Al_2O_3 などのゲルの固化物等から成っていて(小野, 1959)¹⁴⁾、モルタル内部から滲出した水の pH 値は 10~11 を示す。このような環境のモルタル内部においては、水酸化物を作りやすい亜鉛は水酸化亜鉛の形で存在すると思われる。また、水酸化物はコロイドを作りやすいので水酸化亜鉛もモルタル内部ではコロイドの状態で存在し、コロイド粒子は凝集により更に大きくなっているものと

考えられる。このコロイド粒子になるため亜鉛がモルタル内の細孔を拡散しにくいのであろう。亜鉛イオンのモルタルへの吸着やイオン交換も考えられるが、次のような実験によりコロイド化の効果が大きいことを確かめた。この実験に用いたモルタル試料は直径 20 cm, 厚さ 4.9~7.5 cm のモルタルである (Table 5)。

実験の主体はモルタル細孔内に亜鉛溶液を圧入することであるが、まず水を用いて透水実験を行ない、次に ZnCl_2 溶液を用いて透水実験(圧入)を行ない、その後再び水で透水させてこの三段階の透水係数の変化から圧入の効果を調べた。すべてのモルタル試料の ZnCl_2 溶液による透水実験(圧入)の際、モルタル試料を通して出て来る水に亜鉛イオンが全く検出されなかった点からみて、亜鉛はモルタル内に貯溜されていると判断した。実験のうち透水係数が $P=4 \times 10^{-12}$ (cm/sec) のモルタル (S1-12) と $P=4 \times 10^{-9}$ (cm/sec) のモルタル (S1-9) の二つの結果を Fig. 4 と Fig. 5 に示す。(S1-12) のモルタル試料の結果は ZnCl_2 溶液の圧入によって透水係数の大幅な減少をみせ再透水によっても透水係数がほとんど回復していないから、この場合亜鉛水酸化物のため起きる目詰まりが亜鉛の拡散を止めるだけでなく加圧水流をも阻止することを示している。これに対し (S1-9) のモルタル試料は再透水により完全に元の透水係数の値にもどっている。このことは亜鉛水酸化物による目詰まりがそれ程強くないことを示している。このモルタル (S1-12) と (S1-9) の

Table 5. The variation of coefficient of permeability and several constants of mortar samples in experiments, where was forced zinc chloride into mortar pores.

Mortar sample number	Cement percentage weight %	Bending strength kg/cm ²	Compressive strength kg/cm ²	Thickness cm	Pressure at permeability test kg/cm ²	Coefficient of permeability P		
						1st stage (by water) cm/sec	2nd stage (by ZnCl_2 sol.) cm/sec	3rd stage (by water) cm/sec
S1-1	27	60.8	241.9	7.4	10 ²	4.3×10^{-11}	3×10^{-12}	4×10^{-12}
S1-2	"	—	—	"	"	5.5×10^{-11}	3×10^{-12}	8×10^{-12}
S1-4	"	65.0	267.5	7.2	"	2.3×10^{-11}	Submerged	2.6×10^{-11}
S1-7	"	74.9	214.2	4.9	20	1×10^{-10}	"	5×10^{-11}
S1-9	"	51.7	302.5	7.4	2×10^2	4×10^{-9}	2×10^{-10}	3.8×10^{-9}
S1-11	"	80.2	446.7	7.5	"	1.1×10^{-11}	5×10^{-13}	1.2×10^{-12}
S1-12	"	74.1	370.5	"	"	4×10^{-12}	1.5×10^{-13}	5×10^{-13}

Fig. 4. An example of the day to day variation in coefficient of permeability, which shows that zinc chloride forced into mortar pores is effective in choking up the pores of mortar sample in case of $P < 10^{-10}$ (cm/sec). The experiment was performed under hydraulic pressure of 200 kg/cm² and there permeated pure water into mortar in the term before the time of B. B indicates the time of started permeability test by ZnCl₂ solution. C indicates the time of restarted permeability test by pure water. (Mortar sample number S1-12).

Fig. 5. An example of the day to day variation in coefficient of permeability, which shows that zinc chloride forced into mortar pores is ineffective in choking up the pores of mortar sample in case of $P > 10^{-10}$ (cm/sec). B and C are the same as the indications in Fig. 4. (Mortar sample number S1-9).

二つの結果の違いは透水係数の差、つまりモルタル内細孔の断面積の大きさによるものであって、同種の実験 (Table 5) から考えて透水係数 $P = 10^{-10}$ (cm/sec) 付近を境界としてそれよりち密なモルタル試料であれば、亜鉛水酸化物の目詰めによってモルタル内への加圧水の浸透をより小さくできる可能性がある。また、モルタル試料に ZnCl₂

溶液を圧入せず浸しただけでこの効果を得ることを調べたが、浸しただけでは効果が見られなかった (Table 5)。

以上の議論は亜鉛水酸化物に限られるが、実際の核分裂生成物を扱う場合に安価な鉄イオン等を加えればモルタル内細孔をふさぐことにより放射性イオンの拡散を少なくする可能性がある。それに加えて水酸化物は他のイオンを吸着する性質があるから好都合である。実際にこのような水酸化物の凝集を利用して放射性廃液を浄化する試みが行なわれていること (松村ら, 1963)¹⁵⁾ からみて上記の推論の可能性は大きい。

6. ま と め

本実験で得られたように塩素イオン、I-131 イオンなどのようにモルタル内を拡散する核種があると同時に、Zn-65 イオンのように水酸化物となってモルタル内を拡散しない核種のあることが確かめられた。このようなモルタル内における拡散は核種およびその存在状態の違いによって異なると考えられるから、今後種々の核種特に核分裂生成物に含まれる核種について更に拡散実験が行なわれることが望ましい。

最後に本研究に有益な御教示と助言を頂いた東京教育大学教授三宅泰雄博士、並びに気象研究所地球化学研究部の猿橋勝子博士、杉浦吉雄博士、杉村行勇博士に深く感謝の意を表する。

なお、本研究は科学技術庁原子力平和利用関係研究費によって行なっている「海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する試験研究」の一部である。

文 献

- 1) MAWSON, C. A. (1965): Management of radioactive wastes. Van Nostrand Pub. Canada.
- 2) 檜山義夫 (1964): 放射性物質の海洋処分の放射線影響評価と規制法. 日本原子力学会誌, 6 (7), 406-411.
- 3) PRITCHARD, D. W. (1961): Disposal of radioactive wastes in the ocean. Health Phys., 6, 103-109.
- 4) ELIASSEN, R. (1964): Disposal of high-level radioactive wastes. Jour. Water Pollution Control Federation, 36, 201-216.

- 5) MERRITT, W. F. and P. J. PARSONS (1964): Safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass. *Health Phys.*, **10** (9), 655-664.
- 6) BUTT, Yu. M. *et al.* (1964): Cementing of hydroxide precipitates containing certain radioactive elements. *Soviet Jour. Atomic Energy*. Translated from *Atomnaya Énergiya*, **17** (2), 124-129.
- 7) LAZZARINI, E. *et al.* (1963): Sulla fissazione di rifiuti altamente radioattivi in cementi. *L'Industria Italiana del Cemento*, **33**, 45-52.
- 8) CERRIÉ, C. P. (1960): Disposal of radioactive wastes. I. A. E. A., Vienna, **1**, 231.
- 9) 広瀬孝太郎ら (1963): 放射性液状廃棄物処理の研究. *空気調和衛生工学会誌*, **37** (6), 32-38.
- 10) 佐々木忠義ら (1963): 海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究 (第1報). *日本海洋学会誌*, **19** (1), 16-26.
- 11) 佐々木忠義ら (1964): 海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究 (第3報). 同上, **20** (4), 179-184.
- 12) 佐々木忠義ら (1965): 海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究 (第4報). 同上, **21** (2), 45-53.
- 13) 佐々木忠義ら (1964): 海洋投棄用放射性廃棄物容器に関する研究 (第2報). 同上, **20** (4), 168-178.
- 14) 小野竹之助 (1959): コンクリート工学, 材料篇, 森北出版.
- 15) MATSUMURA, T. *et al.* (1963): Decontamination of radioactive waste water by $\text{Fe}(\text{OH})_3$ flocculation II. *Ann. Rept. Radiation Center, Osaka Prefect.*, **4**, 24-27.