

I  
125

放射性廃棄物の地中処分  
に関する基礎的研究

昭和45年6月

井 上 頼 輝

放射性廃棄物の地中処分  
に関する基礎的研究

昭和45年6月

井 上 頼 輝

# 放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究

## 目 次

第1章	緒 論	1
1-1	概 説	1
1-2	放射性廃棄物地中処分の方法	4
1-2-1	固体廃棄物の地中処分	5
1-2-2	気体廃棄物の地中処分	7
1-2-3	放射性廃水の地中処分	8
1-3	放射性廃水の地下注入処分	10
1-4	立地条件と処分の条件	13
1-5	地中処分の経済性	16
1-6	本研究の目的	16
	参 考 文 献	18
第2章	放射性核種の地下移動に関する理論的研究	22
2-1	従来の研究	22
2-1-1	交 換 平 衡	22
2-1-2	交 換 速 度	26
2-1-3	多孔体中の水の拡散	29
2-1-4	イオン交換塔の流出曲線	29
2-2	地下水の挙動と、放射性核種の挙動	32
2-3	不均質で非定常な場合の考察	39
	参 考 文 献	42
第3章	放射性核種の地下移動に関する実験的研究	45
3-1	概 説	45
3-2	イオン交換筒による実験	45
3-2-1	実 験 装 置	45
3-2-2	実 験 方 法	48

3-2-3	実験結果および考察	50
3-3	二井系モデルによる実験	61
3-3-1	実験装置	61
3-3-2	実験方法	64
3-3-3	実験結果および考察	67
3-4	野外実験	74
3-4-1	実験に使用した地層	74
3-4-2	実験方法	77
3-4-3	実験結果および考察	82
3-5	五井系の実験	92
3-6	まとめ	98
	参考文献	98
第4章	放射性物質の地下移動に関する工学的研究	100
4-1	概説	100
4-2	日本原子力研究所東海研究所の地下水調査	100
4-2-1	東海研究所の地質	101
4-2-2	地下水の流れ	101
4-2-3	地下水の放射能汚染に関する調査	108
4-3	日本原子力研究所大洗研究所の地下水調査	112
4-3-1	緒言	112
4-3-2	地下水の流動状態	112
4-3-3	放射性核種の移動速度	114
4-3-4	地下水の汚染より見た原子力施設の安全性	116
4-4	原子力発電により発生する固形廃棄物の地中処分 に関する試算	116
4-4-1	緒言	116
4-4-2	固体廃棄物の発生量	121
4-4-3	廃棄物からの放射性核種の溶出	122
4-4-4	放射性核種の地中での移動	122
4-4-5	人体への影響	124
4-4-6	まとめ	126
	参考文献	127

第5章	結 論	.....	128
5 - 1	本研究の総括	.....	128
5 - 2	謝 辞	.....	130

付 録

# 第 1 章 緒 論

## 1 - 1 概 説

文明の進展を求めるには、エネルギー資源の確保が必須であり、中でも電力は動脈的役割を果たすといわれる。戦後石炭増産に努力したわが国も、中近東の原油が安価に安定して供給されるに及んで、石油が重要なエネルギー源の位置を占めるに至った。なかでも原油生産過剰による販売競争の激化と、造船技術の進歩にもとづく大型タンカーの出現により、原油価格が世界的な物価上昇の中にあっただけあって下落気味であることが石油転換の大きな推進力になっている。ところで、世界の電力消費は年間5～6%の伸びを示しており(日本は1961～1965年平均で1.05%)このまま電力需要が増大すれば、あと20～25年で石油資源も不足して来るものと思われる。表-1.1に世界のエネルギー

資源埋蔵量を示す。オイルシェールは大量に存在することがわかっているが、経済的に石油を取り出すことが困難であり、いきおい人類はそのエネルギー源を原子力に頼らざるを得なくなる。表-1.2は通産省総合エネルギー調査会が示したわが国の将来電力需給想定であるが、火力発電に比し、原子力発電の伸びがいちぢるしい。このような電力の長期需給見通しは、中央電力協議会(2)、通産省総合エネルギー調査会(3)、日本原子力産業会議(4)などから表

表-1.1 世界のエネルギー資源  
(単位 10<sup>18</sup> BTU)

種 類	既 知 可 採 埋 蔵 量	可 能 埋 蔵 量
石 炭	1.8	320
液体炭化水素	1.9	26
天 然 ガ ス	1.9	20
オイルシェール	—	12,000
瀝青岩中の油	0.2	6.1
ウ ラ ン	0.9～1.2	4,000,000
ト リ ウ ム	—	5,600,000

向坂(1)

-1.3, 表-1.4のように発表されている。いずれの予想値も数値的には大差なく、1985年には原子力が全発電の25%、2000年には40～60%に達するものと想像される。

原子力発電所は、火力発電所に比して環境を汚染させる度合が少なく、清浄(clean)だといわれるが、原子力発電が電力の主流となるとある程度環境を汚染させることになり、それをいかに防ぐかが問題となって来る。原子力発電から主として出る放射性廃棄物は、燃料再処理時に発生する液体および気体廃棄物で、その放射性レベルが極めて高いが、これは体積が小さく、かつ放射エネルギーが大きいので、貯留タンク等に永久貯蔵され、環境を汚染させる機会は少ない。それよりも、原子炉平常運転時に排出される1時冷却水を処理したフィルター・スラッジやイオン交換樹脂の処分が問題である。表-1.2の状態では今後の原子力開発が進むとき、年間廃棄物発生量は表-1.5, 1.6のようになり、その量が多くて貯留処理はできず、地中処分や海

表-1.2

## 電力需給規定

	昭45年	50年度	60年度
需要電力量 (10 <sup>8</sup> kWh)	2,308	3,425	7,091
送電損失率 (%)	8.4	8.4	8.2
年負荷率 (%)	65.5	65.0	65.0
12月最大電力 (10 <sup>4</sup> kW)	4,338	6,533	13,550
予備率 (%)	7.3	7.3	7.3
必要供給力 (10 <sup>4</sup> kW)	4,655	7,010	14,538
(内訳)一般水力 "			
揚水 "			
小計 "	1,585	2,166	3,466
火力 "	2,430	4,336	7,572
原子力 "	123	491	3,500
小計 "	3,053	4,827	11,072
受電 "	17	17	0
原子力設備 "	130	600	3,000 ~4,000

通産省総合エネルギー調査会(3)

表-1.3

## 原子力発電の将来規模想定比較

資料名	年度	昭45年 (1970)	50 (1975)	60 (1985)	75 (2000)
中央電力協議会 41-長期計画		122	576		
総合エネルギー調査会 42答申		130	600	3,500	
日本原子力産業会議 41報告		142	484	4,276	16,445
青木氏資料 (41-10)			540	3,790	19,010
C.W.Lechy氏 1965資料					12,000
電源開発調整審議会 42春 電力長期計画 原子力委員会 電力利用長期計 画 42春			600	3,000 ~4,000	

山崎(5)

表-1.4 原子力発電の分担する想定比率 (%) (設備)

資料名 \ 年度	昭45年 (1970)	50 (1975)	60 (1985)	75 (2000)
総合エネルギー調査会42答申	2.6	7.0	24.0	
日本原子力産業会議 41報告	2.7	6.4	26.6	45.8
青木氏資料		5.7	22.4	66.2
C.W.Lechy氏資料				40.4

山崎(5)

表-1.5 放射性廃棄物の年間発生量  
(体積 m<sup>3</sup>/年)

廃棄物 \ 年度	昭45年	昭50年	昭60年
使用済樹脂	390	1570	11200
フィルター・スラッジ	2140	8540	60900
濃縮器廃液	12	50	350
雑固体	—	—	—
計	2540	10160	72450

原子力安全研究協会(6)

表-1.6 放射性廃棄物の年間発生量  
(放射能 Ci/年)

廃棄物 \ 年度	昭45年	昭50年	昭60年
使用済樹脂	123	491	3500
フィルター・スラッジ	184	737	5250
濃縮器廃液	1230	4910	35000
雑固体	62	246	1750
計	1599	6384	45500

原子力安全研究協会(6)

洋投棄などの処分を考えなくてはならない。

放射性廃棄物の最終処分には、(1)海洋処分、(2)地中処分、(3)宇宙処分、(4)原子炉による処分が考えられる。海洋処分は廃棄物をドラム缶につめて、2000 m以上の水深を有する深海に投棄するものであり、海水の体積が $1.37 \times 10^{18}$  m<sup>3</sup>と非常に大きいので、大量の放射性廃棄物を処分できる利点があるが、水深が大きいため投棄後の安全をたしかめるMonitoringができないことや、公海は国際法である海洋法の制限があり、わが国独自の判断では投棄を実施しがたい点がある。また、海洋処分はわが国民の重要な蛋白源である海産物を放射性物質で汚染させてしまう危険があるなど問題点が多い。

地中処分は、土の持つ大きな交換容量を利用しようとするものである。放射性核種は土壤中に放出されると土に吸着され、移動速度がきわめて遅くなり、自己崩壊により消滅する。Monitoringも可能であり、環境の放射能濃度が限界以上になれば、地中に埋めた廃棄物を掘り出す発生源対策も可能である。ただ廃水の質や、処分する土地によって適、不適があり、大量の放射性物質を処分するには向かず、また、昭和2年に制定された「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」により、放射性廃棄物を管理保管せず、直接土中に埋めることは国内法的に禁ぜられている。

宇宙処分は、廃棄物をロケットに積んで、地球の外へ捨てようとするものである。ロケットを用いて地球外へ物質を運ぶことは、姿勢制御さえしなければ常識をはずれるほど高価なものではないので、燃料再処理の際発生する核分裂物質を含む極高レベル廃水などは、ロケット工学が進歩すればこの方法で処分することが可能であるとして一部で検討が始められている。

原子炉による処分は、半減期が長く生体への影響の大きい、例えば<sup>90</sup>Srのような核種を原子炉で中性子照射して、短半減期の<sup>91</sup>Srに変えるような方法であるが、放射性同位元素を廃棄物の中から純粹に抽出することは技術的にも経済的にも難点が多く、実現はかなり困難であろうと思われる。

宇宙処分と原子炉処分とは将来の研究開発に待つべき課題であるが、海洋処分と地中処分は諸外国ですでに盛んに行なわれている。ここでは地中処分について、どのような方法があるかを諸外国の例をひきながら明らかにし、ついで陸上処分の立地条件や処分の条件、放射性物質の地下移動の推定法をのべ、最後に地中処分の経済性についてふれる。

## 1-2 放射性廃棄物地中処分の方法

放射性物質を地下に埋設すると核種が地下水にとけ出し、大層危険なように考えられる。しかし、実際は土の持つ大きな交換容量により土に吸着されて、あまり土中を移動しない。土の持つ交換容量は、一番低い砂で数 meq / 1000 g から、粘土で数百 meq / 100 g に及ぶが、たいいていの土は数 meq / 100 g の容量を持っている。一方、イオン交換樹脂は人工的に 4 meq / g といった高い交換容量を与えられている。ところで、放射性廃棄物を地中処分した場合、大まかに巾 100 m、長さ 500 m、深さ 10 m の土の交換容量を利用できるとすると、砂質土で 4 meq / 100 g の容量を持

つとしても、全体で $3.78 \times 10^7$  eqの交換容量があり、これは約1万トンのイオン交換樹脂に相当し、たとえ放射性物質が漏出しても強く土に交換吸着されて動かない。たとえば、カナダのChalk River 研究所は、花崗岩の上に氷河粘土と砂とが堆積した地質であるが、1952年にNRX炉の爆発事故があり、そのとき生じた約 $10^3$  Ciの $^{90}\text{Sr}$ と $10^3$  Ciの $^{137}\text{Cs}$ を含む $10^4$  Ciの核分裂物質を地中処分した。わが国で、日本原子力研究所東海研究所が放出する放射能が、年間で約5 Ci、同じく大阪府熊取にある京都大学原子炉実験所が、年間約5 m Ciであることを考えると、1万 Ciがいかにか大量の放射性物質であるかがわかる。ところがその後15年たっても、処分地点より250 m離れたMonitoring井で放射能はまだ検出されていない。

地中処分の対照物は液体廃棄物、固体廃棄物があり、また気体廃棄物の処分も考えられている。以下にその方法を概説する。

1-2-1 固体廃棄物の地中処分 通常放射性廃棄物はその放射能水準によって低 level, 中 level, 高 level に分けられるが、国により、施設によってその内容は異なる。たとえば液体廃棄物について見ると、ポーランドでは $10^{-2}$  Ci/m<sup>3</sup>以上が高 level といわれるが、フランス、ノルウェー、英国では低 level であり、日本、米国、スウェーデン、チェコスロバキヤ、インドでは中 level である(7)。このように区分の尺度に混乱があるので、国際原子力機構 (IAEA) では表 1-7 のように標準化した。が、まだ各施設慣用の呼称がそのまま使用されているので、ここではそれに従うことにする。固形廃棄物の低 level は作業員に対する個人しゃへいを要しないもの、中 level はしゃへいを必要とするもの、高 level は燃料再処理廃水を固化したものを指すことが多い。

(1) 低 level 固形廃棄物の処分 低 level 固形廃棄物は、管理区域から発生する雑塵埃であり、放射能の有無を入念に検査してから捨てるわけには行かぬので、管理区域から出た塵埃はすべて低レベル廃棄物と見ることが多い。このような塵埃は通常ポリエチレン袋に入れて集められ、これを段ボール箱に入れて処理場に掘った溝 (Pit, trench という) に運び、溝が廃棄物で一杯になると上から土をかけて展圧する。この種のごみの比重は $0.05 \sim 0.5$  g/cm<sup>3</sup>で平均 $0.2$  g/cm<sup>3</sup>である。通常の都市ごみと同じく、可燃物と不燃物を分類して、可燃物は焼却したり、あるいは体積を減らすために圧縮器で圧縮したりした時代があったが、いずれも操作に手間どり、現在は行われていない。焼却の場合、ごみを可燃物と不燃物によりわけるのは困難だし、焼却炉の filter がよくつまり、また灰が放射性を帯びるために処置がむづかしいなどの難点がある。最近プラスチック、ことに塩化ビニールが多くなり、これを焼却すると塩酸ができて炉が早く腐食するなどの問題が起る。また圧搾機で廃棄物を圧搾すると放射性のほこりが出て、作業員が被曝する。結局、固体廃棄物は何もせずに土に埋めるのが最も安価で、安全ということになる。廃棄溝の大きさは、たとえば Windscale (8) では長さ640 m、巾27 m、深さ4.5 m、体積は78,000 m<sup>3</sup>に及び、また Los Alamos (9) では長さ150 m、巾

表-1.7 放射性廃棄物の区分

気体廃棄物

分類	放射能	備考
1	$< 10^{-10} \text{ Ci/m}^3$	処理はしない
2	$10^{-10} \sim 10^{-6} \text{ Ci/m}^3$	ろ過により処理する
3	$> 10^{-6} \text{ Ci/m}^3$	その他の処理法を要する

液体廃棄物

分類	放射能	備考
1	$< 10^{-6} \text{ Ci/m}^3$	処理はしない
2	$10^{-6} \sim 10^{-3} \text{ Ci/m}^3$	シャヘいを要することがある } 通常の方法で処理する
3	$10^{-3} \sim 10^{-1} \text{ Ci/m}^3$	
4	$10^{-1} \sim 10^4 \text{ Ci/m}^3$	
5	$> 10^4 \text{ Ci/m}^3$	冷却を必要とする

固体廃棄物

分類	表面線量率	備考
1	$< 0.2 \text{ Rad/h}$	} $\alpha$ 放射性物質を含まないもの
2	$0.2 - 2 \text{ Rad/h}$	
3	$> 2 \text{ Rad/h}$	
4	放射能は $\text{Ci/m}^3$ で示す	$\alpha$ 放射性物質を含む

鈴木(8)

30 m, 深さ9 m, 体積40,000 m<sup>3</sup>のものを使用している。溝の大きさは長手方向に車が自由に出入りできること、溝の底で掘削機械を操作できることなどによって決まる。深さは地下水位との関係で、底面が少くとも地下水面より2 m上にあるようにする。ごみを1 mの高さに入れ、その上に15 cmの土をかけて展圧し、またその上に1 mの厚さにゴミを積むという方法で溝をうめて行く。安全性を確認するために、Windscale(8)のように滲透水を採取して放射能を測定したり、Savannah River(10,11,12)のように埋め戻しの土にBentoniteを用いて透水性を悪くし、雨水が地中処分した廃棄物と接触しないようにしているところもある。

(2) 中level廃棄物の処分 主として、Hot CellやGlove Box から出る廃棄物で、シャヘいを要するため底に穴のあいたシャヘい容器に釣り下げて運び、コンクリート管あるいは鉄管を縦方向

に埋めて作った穴に落とし込む。たとえば、Los Alamos(9)では直径60cm、長さ6mのコンクリート管を用いて堅穴を作っているし、Chalk River(13,14,15)でもコンクリート管の中を鉄板で覆って使用済み燃料の貯蔵庫にしている。さらにコンクリート製の箱に廃棄物を入れて、上からコンクリートを流して固めたり(Chalk River(14))、ケーソンに入れて貯蔵したり(Hanford(16))するが、体積が大きく汚染度の高い機械廃材などは、トンネルを掘って鉄道の引込線を作り、体積110m<sup>3</sup>の貨車に入れて貨車ごとトンネル内に捨てる(Hanford(17))などの方法も取られる。Chalk River(13)では廃棄物のコンクリート固化体を入れたドラム缶をさらにコンクリートで固める。欧州ではこの方法で駐車場を作っているところもある。

(3) 高level廃棄物の処分 燃料再処理から生じた廃液は、しゃへいが必要なばかりでなく、自己の放射能で発熱する。この種の廃液は液体のままでは貯蔵が困難なので、粘土とともに1000~1300°Cで仮焼して、セラミック体にし、地中に貯蔵する。米国のIdaho Chemical Processing Plant(18,19,20)では、1900m<sup>3</sup>の再処理廃水を仮焼して210m<sup>3</sup>の粘土粒を作り、これを直径76cm、高さ6.1m~7.3mのステンレス製円筒容器にたくわえている。か焼ペレットは平均直径0.57mm、比重(bulk)は1.00~1.10g/cm<sup>3</sup>で、1gに0.13Ciの核分裂物質を含み、170~430kcal/hr-m<sup>3</sup>の発熱をする。このためタンクは地下6mのところに埋蔵し、除熱のために常に空気を送り、また水分が水素と酸素ガスに分解して爆発の危険性を帯びるので再結合器をつける。この場合は放射能が高くてペレットを直接地中に埋めることはできず、ステンレス製タンクの中に厳重に管理保管され、地中処分の利点はただ土の持つしゃへい効果を利用する点だけである。

1-2-2 気体廃棄物の地中処分 土の空げき率は通常10~40%であるから、地下水面上の土の体積の1/3は空げきである。これを放射性気体の貯蔵庫にして、半減期の短い核種はここで消滅させようとする試みが1950年ごろから、主として再処理工場から発生する気体廃棄物の処分と関連して考えられ、研究されている。この他に土が気体を吸着する吸着効果や、地下を進む時に受ける拡散による希釈効果などが期待される。処分対照として原子炉より出る廃気と、原子炉の最大仮想事故(Maximum Creditable Accident)時に発生する<sup>131</sup>Iや<sup>85</sup>Krを含む廃気の2つが考えられるが後者の方が有望であるとして、Clebsch(21)はつぎのような仮定で試算をしている。

(1) 廃気量 —  $2.7 \times 10^5$  m<sup>3</sup>

(2) 廃気の組成 —  $2 \times 10^5$  Ciの<sup>131</sup>Iと、 $2 \times 10^5$  Ciの<sup>85</sup>Krを含む飽和水蒸気

(3) 処分する地層は地表から30~150m下にある、厚さ12mの礫層で、上下を不透気層ではさまれている。

(4) 有効空げき率10%、有効透気率は空気に対して100 millidarcies

これによると、地下での気体の滞留時間は250日で、<sup>131</sup>Iの半減期の9倍に当り、<sup>131</sup>Iは  $2 \times$

$10^5$  Ci から約  $400$  Ci に減少する。

この方法はまだ試算の段階であるが、原子炉の近くによほど理想的な土地がないと実行は困難であろう。

### 1-2-3 放射性廃水の地中処分

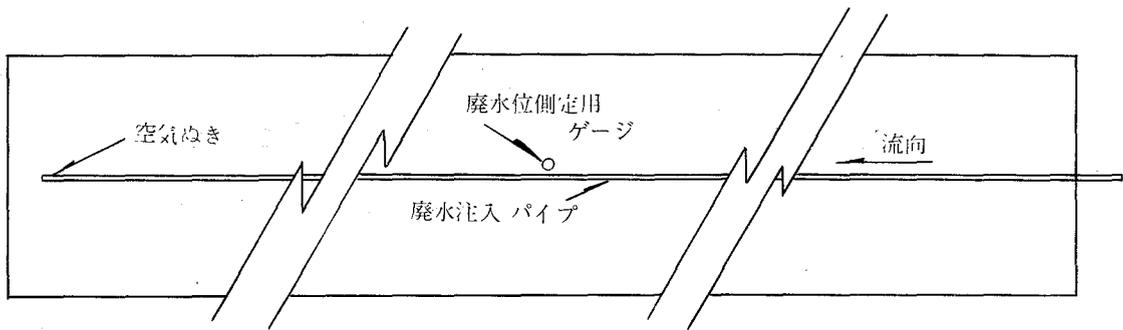
(1) 低 level 廃水の処分 米国 Savannah River 原子力研究所 (10, 11, 12) はジョージア州オーグスタの近く、Savannah 河に沿った  $830$  Km<sup>2</sup> の広大な敷地を持つ研究所で、地質は主として砂であり、イオン交換容量は pH 5 で  $0.1$  meq /  $100$  g , pH 10 で  $1.2$  meq /  $100$  g とかなり低い。年間降雨量は  $1100 \sim 1200$  mm で、地表面下  $12 \sim 18$  m に地下水が存在する。ここでは池を掘り、 $100 \sim 1000$  m<sup>3</sup> / 週 の低レベル廃水を導いて地下浸透させている。13年間で  $2500$  Ci の核分裂物質と  $13$  Ci の超ウラン元素とをこの方法で処分したが、まわりに掘った Monitoring の井戸水には、三重水以外は現われていない。

このように池に廃水を導いて浸透させる処分法をさらに大がかりに行なっているのが、米国 Hanford 研究所である (16, 17, 22, 23)。同研究所はワシントン州にあり、 $1550$  Km<sup>2</sup> の広さの敷地を持つが、Columbia 河から  $11 \sim 16$  Km 離れたところに地中処分のための区轄を作り、ここに廃水や固形廃棄物を処分している。同研究所附近は年間降雨量が  $160$  mm できわめて乾燥した土地であり、したがって地下水は地表から  $60 \sim 70$  m 下に存在する。ここでも総水面積  $3 \times 10^5$  m<sup>2</sup> に及ぶ池を掘り  $5 \times 10^{-5}$   $\mu$  Ci / ml 以下の低レベル廃水を1日に約  $30,000$  m<sup>3</sup> 入れて地下に浸透させる。20年間に体積にして  $3 \times 10^8$  m<sup>3</sup> ,  $\beta$ 放射能で  $2$  万 Ci をこの方法で処分した。

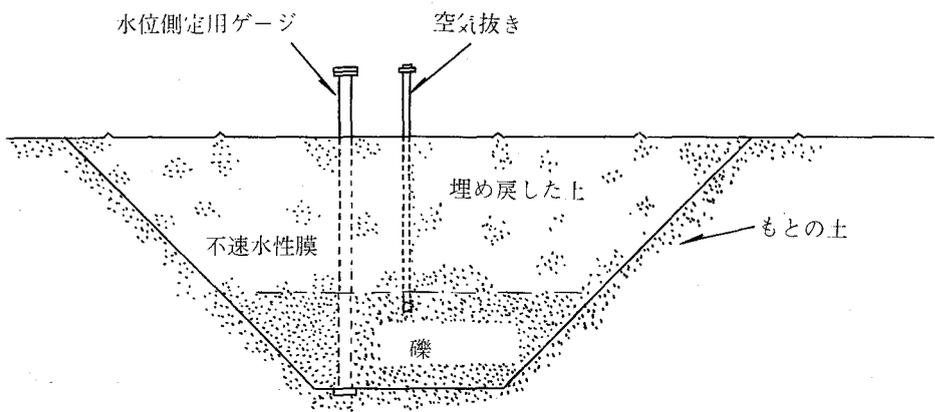
カナダの Chalk River 研究所 (13, 14, 15) は Ottawa 河の南に  $40$  Km<sup>2</sup> の敷地を持ち、この中に  $7$  Km  $\times$   $2$  Km の廃棄物処理場を造成している。地質は花崗岩の上に氷河粘土と砂とが堆積したものである。ここでは長さ  $70$  m , 巾  $37$  m , 深さ  $2.5$  m の池を作り、これに玉を詰めて廃水を導く。1966年には体積にして  $2.8 \times 10^4$  m<sup>3</sup> , 放射能にして  $35$  Ci の低レベル廃水をこの方法で処分している。1966年までに処分した廃水は、 $12330$  Ci , このうち  $2500$  Ci は <sup>90</sup>Sr であった。

(2) 中レベル廃水の処分 Hanford の研究所は、再処理溶剤の洗浄水や汚染した蒸気凝縮水などで、 $5 \times 10^{-5}$   $\mu$  Ci / ml から  $100$   $\mu$  Ci / ml の中 level 廃水を Crib とよばれる地中処理装置で地下に浸透させる。最初この研究所では丸太で底のない箱 (Crib) のようなものを作り、これに礫を詰めて地下に埋め廃水を流し込んでいた。現在は図-1.1に示すような底の巾  $3$  m の溝を掘り、廃水を入れる pipe を通し、礫を途中まで詰め、上はプラスチックシートで覆って土をかけ、パイプから地下に廃水を浸透させる。浸透速度は  $400$   $\ell$  / m<sup>2</sup> / 日で Crib と Crib の間は少くとも  $120$  m 離す。

Crib の耐用年限は  $3 \sim 5$  年であり、現在までにこの方法で  $3 \times 10^5$  Ci の放射能を含む  $2.3 \times 10^6$  m<sup>3</sup> の廃水を処理したが、土に吸着されて自己崩壊したものもあり、現在は約  $5 \times 10^4$  Ci の放



平面図



断面図

図 - 1.1 Cribによる中レベル廃水の地下処分  
Beard and Godfrey(16)

放射性物質が地下に存在するという。

米国のOak Ridge研究所では、Hydrofracture法といわれる特殊な方法で、中レベル廃水を処理している(24,25,26,27,28,29)。ここでは廃水を蒸発缶を用いて  $\frac{1}{15} \sim \frac{1}{20}$  の体積に濃縮するが、このため放射能濃度が最大  $130 \mu\text{Ci}/\text{ml}$  の汚泥が年間  $570 \sim 760 \text{ m}^3$  発生する。この汚泥 1 liter 当り、セメント  $0.36 \text{ Kg}$ 、Fly Ash  $0.24 \text{ Kg}$ 、Illite  $0.05 \text{ Kg}$  と、セメントの硬化を遅らせるために  $0.4 \text{ g}$  の Delta Gluconolactone を加え、ねりまぜてセメントペーストとした後、これを地表より  $300 \text{ m}$  ほどの深さの頁岩層に  $105 \text{ Kg}/\text{cm}^2 \sim 175 \text{ Kg}/\text{cm}^2$  の高圧をかけて圧入する。頁岩には亀裂があるので、セメントペーストは亀裂を大きくしながら頁岩層の中に入って行く。一つの亀裂に注入を終ると注入位を少し上げてつぎの亀裂に圧入する。セメントペーストは数日たてば固化して頁岩の一部になってしまう。同研究所では中レベル廃水を年間約  $600 \text{ m}^3$  の方法によって処分した。

(3) 高レベル廃水の処分 高レベル廃水になると、さすがに地中処分はあまり使われないが、Hanford 研究所では再処理のとき用いた溶剤を地中処分している。まず、長さ60m、巾6m、深さ1.2mの溝を掘り、溝の底と、地下水位との間の土の体積の10%に相当する量の廃水を入れ、あとで土をかける。この方法で、1957年までに $10^5 \text{ m}^3$ 、放射能にして $6.6 \times 10^5 \text{ Ci}$ を処分した。このように欧米諸国では広大な土地を所有する関係もあって、かなり大量の放射性物質を液体あるいは固体の形で地下に処分している。

### 1-3 放射性廃水の地下注入処分

放射性廃水の地下処分は、通常、地下水あるいは地下水と地表面との間のAerated Zoneに廃水を注入することにより行なわれる。廃水量が少いときは図-1・2(a)のように一つの注入井と、これを取りまいてMonitoring井を配置すればよいが、注入廃水量が多くなると地下水位が上昇するし、地層が不均一な場合は、注入した放射性物質がMonitoringされずに、圏外に去ってしまう可能性が高くなる。そこでこの場合には図-1・2(c)のように注入井と揚水井を交互に設置して、注入水量と揚水量をbalanceさせる方法が取られる(30)。こうすれば、地下水位の上昇は小さく押えられるし揚水井をMonitor井として使えば、注入放射性物質の移動を確実に把握できる。その最も簡単な場合が図-1・2(b)の二井系で、一井を注入井とし、他井より同量の地下水を揚水するものであり、注入放射性物質を揚水井の方に引きつけることができる。

注入した放射性物質がMonitorされることなく逸散することを防ぐために、Roedder(31)はセメントで図-1・3のようにシャ水壁を作り、この中に円周に近く注入井を、また中心に揚水井を配置して、地層の交換容量を十分に使用することを提案した。揚水井のまわりにはMonitor井を掘って、揚水井に放射性物質が表われる時期を予測する。しかしこの方法はかなりの経費がかかるので、まだ実行されていない。

一本の井戸で注入できる廃水量は、水の透水係数、透水層の厚さ、注入井の直径、地下水位、注入圧に関する(32)。Thiem(33)は良く知られているように注入可能量として

$$Q = \frac{2\pi pB(h_e - h_w)}{\log_e \frac{r_e}{r_w}} \quad (1-1)$$

を与えた。ここに

Q = 注入率

p = 透水係数

$h_e$  = 地下水位

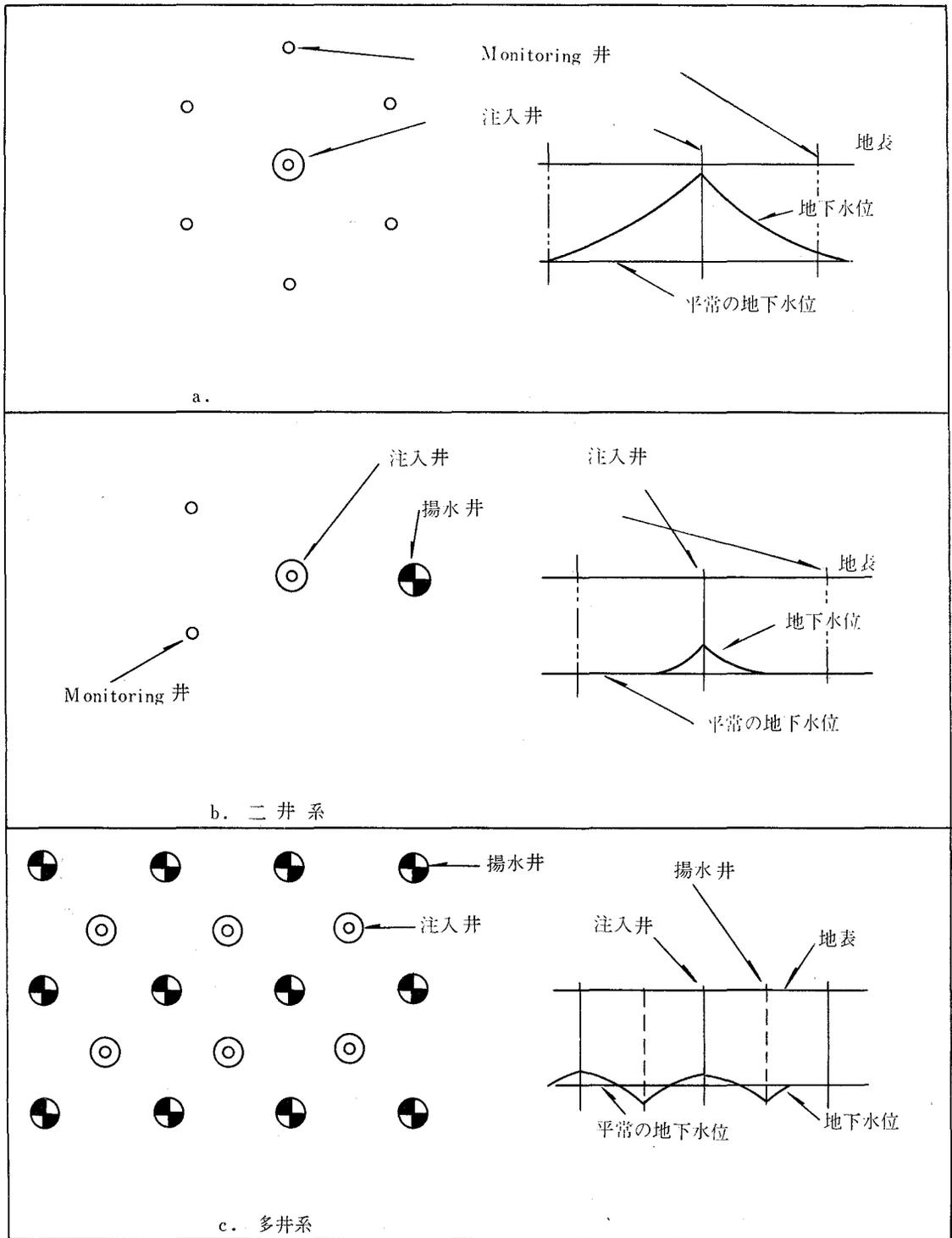


図 - 1.2 放射性廃水の地下処分法

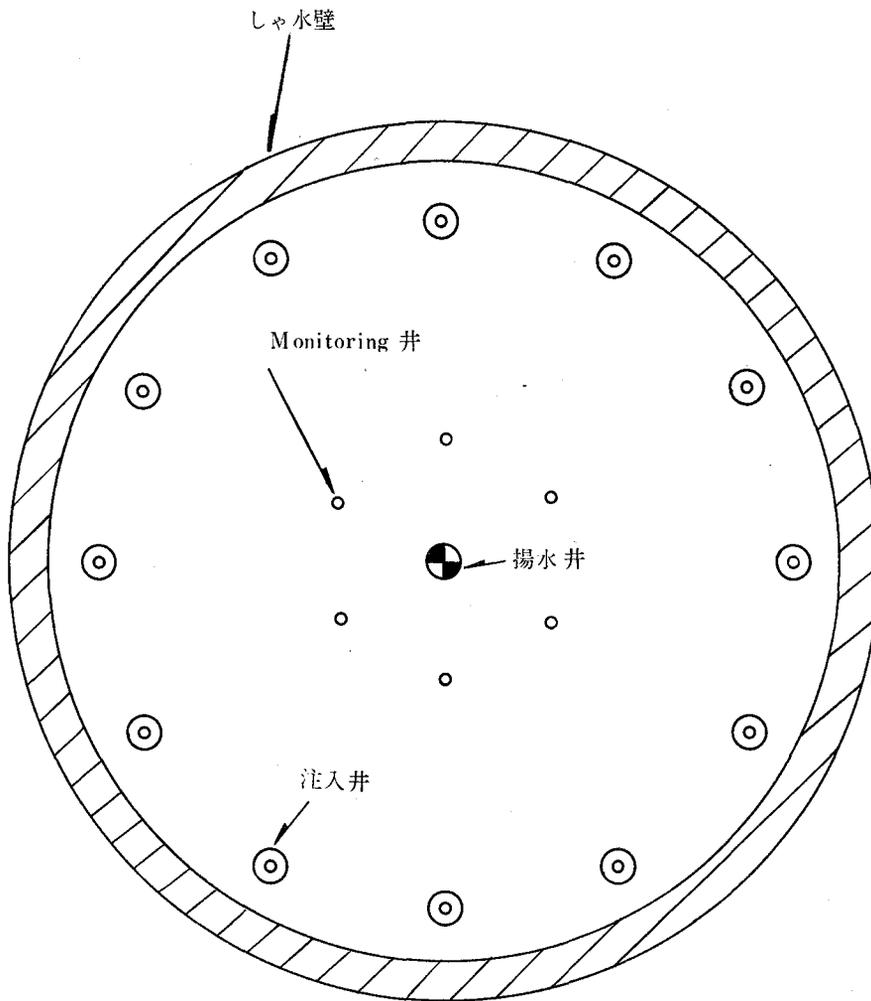


図 - 1.3 Roedder(31) による放射性廃水の地下処分法

$h_w$  = 注入水圧

$r_e$  = 注入井より、地下水位が  $h_e$  の点までの距離

$r_w$  = 注入井の直径

$B$  = 透水層の厚さ

である。透水係数、注入圧、井戸の直径が増すと注入率は増加するから、注入井の地点でダイナマイトで帯水層を爆破して、透水係数を増加させる場合がある。

ところで、注入量は、注入後時間がたつと、注入井に水中の浮遊物がつまったり、細菌が繁殖するた

めに減少する。この場合、通常短期間注入井から地下水を汲上げて目づまりを取る (Re-development) が、揚水が強い放射性を帯びるので、放射性廃水の注入処理の場合にはなるべく回数を少なくする。Dicky and Anderson(32)によれば、注入抵抗を増加させる最大の原因は、地層の空げきに入り込み得るような粒子であるが、彼等は地層の空げきの直径 R として

$$R = (8.85 \times 10^{-5}) \frac{p}{f}$$

を実験的に与えた。ここに

f = 地層の空げき率

p = 地層の透水係数

である。

水中の藻類、細菌、真菌が増殖すると、注入抵抗が増加するし、また鉄管が腐食する(33)。注入井の pH も重要な要素で、pH が低いと腐食の問題が起るために、Holben(34)は pH を 8.3 以上にするのが良いと述べている。

廃水の地下注入は、石油工学でよく行われるが、通常、注入前にばっ気、凝集、ろ過、塩素滅菌をす。ばっ気により鉄、マンガン、 $H_2S$  など、腐食や無機物の沈殿による目づまりを起す物質を除去する。薬品凝集、ろ過により浮遊物を除去し、塩素滅菌により微生物を死滅させる。補助処理として、アルカリで pH を調節し、また溶存酸素を除くために減圧処理することがある(35)。

Stormont(36)は、ろ過抵抗の増大は、注入廃水を membrane filter にかけてみればわかると報告している。一定圧で廃水をろ過するとき、ろ速、ろ過量は指数関係を示すので、抵抗係数から、圧力の増加率が推算できる。

#### 1-4 立地条件と処分の条件

IAEAのSafety Series No.15(37)は、地中処分の条件として表-1.8を考えている。地中処分した廃棄物からの放射性核種の漏出を考えれば、液体やSludgeより固体を処分する方が安全性が高く、一度漏出した放射能の地下移動を考えると、土は交換容量が大きく透水性が低いことが望ましい。また地下水と地表面との間が広いほど移動距離が長く、有利であるから、降雨が少いことも条件の1つになる。放射性核種の地下移動は、周囲の水の塩分濃度に左右されるから、廃棄物は低塩分濃度で、Ca、Na、Mgなどの可溶性の塩をあまり含まぬのが好ましい。廃棄物の中に含まれる核種は生体への影響の少い短半減期のものがよく、土に吸着されにくい陰イオン系の元素、両性のRuや、Radiocolloidを作りやすいCoなどは、大量に存在すると問題となる。この他に、住民への影響として、処分場は人口密度の低い場所がよく、まわりに地下水を利用している場所が少く、海岸の近くで地下水が海に直接流入している場所なら理想的である。管理、運搬の面から見ると、処分の場所が

表 - 1・8 地下処分の立地条件

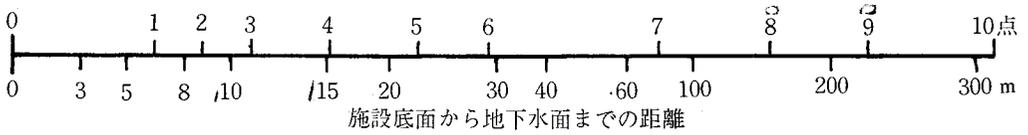
要素	好条件	悪条件
廃棄物の物理的性状	固体	液体, 汚泥
廃棄物の化学的性状	アルカリ, 中性, 低塩分濃度	酸, 高塩分濃度
放射性物質の性状	短寿命の核種	長寿命の核種, 陰イオン性の核種
地理的条件	降雨量少 河川湖沼より遠い 人口密集地より遠い	降雨量大 河川湖沼に近い 人口密集地に近い
地質(地球化学)	砂質で締め固められていない土で 溶解性カルシウム塩を多く含まぬ こと	亀裂のある岩, 交換容量のない土, カルシウムや, 溶解性の塩を多く 含む土
水文学的要素	地下水位が深い 地下水の流速小 地表水に出るまでの距離が大	地下水位が浅い 地下水の流速大 地下水はすぐ川に出る

廃棄物の発生場所, 処理の場所に近く, できれば同一敷地内にあって, 輸送のために一般公道をトラックで運搬することがないのが望ましい。

もっともこれらの条件は個々の処分場に対し検討すべきものであって, 好条件とされているものも必ずしも特定の場所にとって有利な条件とならないことがある。廃水进行处理するとき, 透水性の低い土は, 地下水の流速を低下させるが, 一方では廃水の地下への浸透率を悪くし, そのために大きな処分場が必要になって来る。粘土は不透水性で交換容量も高いから, 処分場所として適当であるように見えるが, 不透水性であるために放射性核種を含む水が粘土と接触せず, 高い交換容量も利用できない。さらに粘土層に固形廃棄物を投棄すると, 雨水が排除されずついには地上にあふれ出ることもある。

これらの条件は, 人工的にある程度改善することができる。化学薬品を地下に注入して土地を固め, 地下水をしゃ断したり(日本材料学会(38)), 地下ダムを築いたり(松尾, 河野(39)), 処分場を傘(Umbrella)とよばれるBentoniteで覆って透水性を低くしたりする工法(Savannah River(10))も存在する。

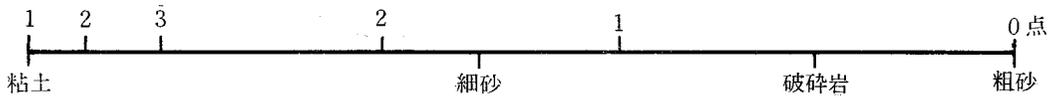
ところで処分子定地がいくつかあるときそれを比較するのは困難であるが, IAEAのハンドブック(37)は, そのめやすとして図-1・4のように各立地条件によって点数を数える方法を提案している。これは地下水位, 交換容量, 透水性, 地下水の水位勾配, 表流水からの距離の各項目について, 地下処分についての有利な度合を点数で表わすもので, たとえば処分のために掘った溝の底面と地下水位の間の距離が, 地下水が最も高い場合に3m(0.5点), 土壌がシルトを含む砂(2点), 透水性が細砂に近いとして(2点), 地下水の勾配が5%(1点), 川までの距離が150m(3点)とすると, 全部で



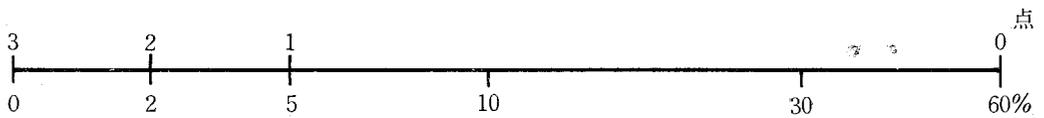
a. 地下水位



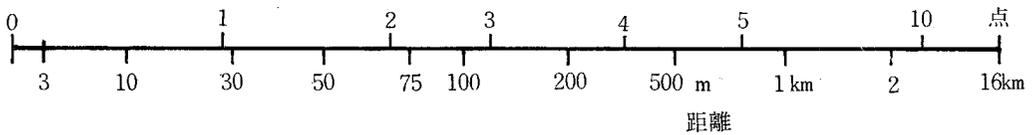
b. 交換容量



c. 透水性



d. 水面勾配



e. 問題となる地点からの距離

図 - 1・4 地中処分立地条件の探点法

8  $\frac{1}{2}$  点になる。もちろんこの点数自体に意味はないが、他の処分場との比較には使用できる。

## 1-5 地中処分の経済性

経済性の問題を論ずるとき、関連する要素がきわめて多いために、これを各施設間で正確に比較することは困難な場合が多い。たとえば処分の安全を計るために Monitoring を行うとき、作業員の給料、管理者の給料、機械の購入費、償却費、修理費などを見込まねばならぬが、それがどのていど処分の cost に含まれるかは場合によって異なる。これを標準化する作業は IAEA で進められているが、未だ地中処分については数値が発表されていない。そこで、発表された資料を集積すると、液体について表-1・9、固体廃棄物について表-1・10 のようになる。低レベル廃水の処分費は、1  $\text{m}^3$  当り 50 銭ときわめて安価であるが、中レベルでは 250~540 円/ $\text{m}^3$ 、高レベルでは 2700 円/ $\text{m}^3$  に達する。放射能レベルが高くなると処分費が上るのは、主として輸送、Monitoring の費用がかさむからである。

固体廃棄物の場合、低レベルのごみを地中に溝を掘って埋める場合は 2000~10000 円/ $\text{m}^3$  ですむが、中レベルのものをトンネルを掘って捨てたときは 20 万円/ $\text{m}^3$ 、ケソンに入れるときは 100 万円/ $\text{m}^3$ 、高レベル廃水のか焼体を地中埋蔵するときは 1  $\text{m}^3$  当り実に 300 万円もかかる。低レベルのごみのとき、そのコストの 12% は保健物理上の検査に、12% が埋立てに、16% が輸送に、そして残りの 60% が材料と集荷費に使われている (13)。

## 1-6 本研究の目的

本研究は放射性廃棄物の地中処分に関する諸問題を、理論的、実験的に解明し、地中処分に必要な設計の理論を確立することにある。この場合、地下に処分した放射性物質の移動を把握することが最も重要な課題であるが、地層中の放射性核種の移動には、多孔体内流体の拡散と、土の物理化学的な吸着現象が関係し、また地層が均質でないためにきわめて複雑な様相を呈する。現在までの理論は、均一な地層中を一方向に流れる地下水について、放射性核種の移動を、水理的な拡散あるいは交換吸着のいずれか一方を考慮に入れて解析したものであり、複雑な地層中における三次元の流れに適用できる理論の出現が待たれていた。そこで、地下水の動きと、放射性核種の地下移動との関連を研究し、地下水の様相より放射性核種の移動を推定する方法を求めようとした。また理論の実用性を知るために、実際の地層に放射性物質を注入し、その移動を追跡し、理論との良好な一致を見た。

表 - 1.9 廃水地中処分のコスト

level	発生場所	国名	濃度 ( $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ )	年間発生量 ( $\text{m}^3/\text{年}$ )	処分法	コスト ( $\text{円}/\text{m}^3$ )	備考	文献
低level	Hanford	米	$<5 \times 10^{-5}$ 平均 $7 \times 10^{-5}$	$1.1 \times 10^7$	浸透面積 $3 \times 10^5 \text{m}^2$ の池	0.5	建設費 7200万円 操業費 144万/年	(16)
中level	Hanford	米	$5 \times 10^{-5} \sim 100$	$10^6$	$180 \text{m}^2$ のCrib	250	建設費 1440万 操業費 290万/年	(16)
	Oak Ridge	米	$<130$	600	セメントペーストに して地下注入	540		(24)
高level	Hanford	米		$10^4$	浸透面積 $680 \text{m}^2$ の溝	2660	再処理溶剤 建設費 540万 操業費 250万/年	(16)

表 - 1.10 固体廃棄物地中処分のコスト

level	発生場所	国名	表面線量率 ( $\text{mr}/\text{hr}$ )	年間発生量 ( $\text{m}^3/\text{年}$ )	処分法	コスト ( $\text{円}/\text{m}^3$ )	備考	文献
低level	Wind scale	英	$<750$	5,000	溝に埋める	1870~2570	溝は $640\text{m} \times 18\text{m} \times 3.5 \sim 4.5\text{m}$	(8)
	Los Alamos	米	$<5000$	5,000 ~7,000	"	7,200	溝は $150\text{m} \times 30\text{m} \times 9\text{m}$	(9)
	Savannah River	米	50 (7.6 cm離れて)	15,000	"	12,600		(10)
中level	Hanford	米	—	—	ケーソン	1,080,000	ケーソン容積 $3 \text{m}^3$	(16)
			—	—	トンネル	198,000	貨車 ( $110 \text{m}^3$ ) が36輛入る	
高level	Oak Ridge	米	—	—	ステンレス缶に貯蔵	3,384,000	再処理固化体	(24)

## 参 考 文 献

1. 向坂正男 : エネルギー経済と原子力発電, 日本原子力学会誌 9, 7, 26-31 (昭42)
2. 中央電力協議会 : 昭和41年度電力長期計画, (昭42.)
3. 総合エネルギー調査会 : 総合エネルギー調査会報告, (昭42.)
4. 日本原子力産業会議 : 電力需要と原子力発電の長期見通し(昭41.)
5. 山崎久一 : わが国における原子力発電の将来規模, 日本原子力学会誌 9, 7, 36-40 (昭42)
6. 原子力安全研究協会固体廃棄物処理処分専門委員会 : 中間報告書, 原安協報告-15, (昭44)
7. 佐伯誠道 : 放射性廃棄物区分の標準化に関する会合, 保健物理 2, 4, 187-188 (昭42)
8. Howells, H., Trench disposal of solid radioactive waste from the Windscale and Calder Works of the UKAEA, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/2 3-15 (1967)
9. Enders, J.W., Solid Radioactive waste disposal at the Los Alamos Scientific Laboratory, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/3 17-32 (1967)
10. Marter, W.L., Ground waste disposal practices at the Savannah River plant, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/7 95-107 (1967)
11. Prout, W.E., Adsorption of fission products by Savannah River plant soil, AEC Report DP-394 (1959)
12. Fenimore, J.W., Land burial of solid radioactive waste during a 10-year period. Health Physics, 10 229-236 (1964)
13. Merritt, W.F. and C.A. Mawson, Experiences with ground disposal at Chalk River, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA, SM-93/6 79-92 (1967)
14. Mawson, C.A., Nuclear waste management in Canada, Jour. Water Pollution Control Federation, 35 1055 (1963)
15. Parsons, P.J., Migration from a disposal of radioactive liquid in sands, Health Physics, 9 333 (1963)

16. Beard, S.J. and W.L. Godfrey, Waste disposal into the ground at Hanford, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA, SM-93/9 123-132 (1967)
17. Brown, R.E., H.M. Parker and J.M. Smith, Disposal of liquid wastes to the ground, Proc. United Nations Int. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, 9 669-692 (1956)
18. Wheeler, B.R. Storage of radioactive solids in underground facilities -- current ICPP practices and future concepts, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA SM-93/31 421-440 (1967)
19. Commando, R.E. et al, Operation of the waste calcining facility with highly radioactive aqueous waste, AEC Report IDO-14662 (1966)
20. Lakey, L.T. and J.R. Bower, ICPP waste calcining facility safety analysis report, AEC Report IDO-14620 (1963)
21. Clebsch, A. and E.H. Baltz, Progress in the United States of America toward deep-well disposal of liquid and gaseous radioactive wastes, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA, SM-93/43 591-603 (1967)
22. Brown et al, Experience in the disposal of radioactive wastes to the ground at two production sites, Proc. 2nd U.N. Int. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, A/Conf. 15/P/1 767 (1958)
23. Pearce, D.W. et al, A review of radioactive waste disposal to the ground at Hanford, Proc. Scientific Conference on the Disposal of Radioactive Wastes, IAEA, Monaco 345 (1959)
24. McClain, W.C., Hydraulic fracturing as a waste disposal method, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, IAEA, SM-93/10 135 (1967)
25. De Laguna, W., Disposal of radioactive wastes by hydraulic fracturing, Part I, General concept and first field experi-

- riments, Nuclear Engineering and Design, 3 338-352 (1966)
26. De Laguna, W., Disposal of radioactive wastes by hydraulic fracturing, Part II, Mechanics of fracture formation and design of observation and monitoring wells, Nuclear Engineering and Design 3 432-438 (1966)
  27. Weeren, H.O., Disposal of radioactive wastes by hydraulic fracturing, Part III, Design of ORNL's shale fracturing plant, Nuclear Engineering and Design, 4 108-117 (1966)
  28. Tamura Tsuneo, Disposal of radioactive wastes by hydraulic fracturing, Part IV, Chemical development of waste-cement mixes, Nuclear Engineering and Design, 5 477-485 (1967)
  29. McClain, W.C., Surface uplifts associated with the hydraulic fracturing disposal technique, AEC Report ORNL-CF-5-48 (1966)
  30. Fancher, G.M., Secondary Recovery of Oil in the United States. American Petroleum Inst., New York, 1942. p.53.
  31. Roedder, E., Atomic waste disposal by injection into aquifers. Second Nuclear Engineering and Science Conference, March 11-14, 1947. The Am. Soc. of Mechanical Engr., 1957. 3-14
  32. Dickey, P.A. and K.H. Andersen., The behavior of water-input wells, Secondary Recovery of Oil in the United States. American Petroleum Institute, 1950. 317-341
  33. Lada, A., Microorganisms are bad actors in water flooding. Oil and Gas Jour., 57 93-95 (1959)
  34. Holben, J.H., Flood water analysis and interpretations. J. Petroleum Tech., 11 22-26 (1959)
  35. Holbrook, G.W., and A.R. Ellenberger, Source and purification of water supply, Secondary Recovery of Oil in the United States. American Petroleum Institute, 301-306 (1950)
  36. Stormont, D.H., Filter test gives data on quality of flood

- waters. Oil and Gas Jour., 56 84 (1958).
37. Radioactive Waste Disposal into the Ground, IAEA Safety Series, No.15, IAEA 111 (1965)
  38. 日本材料学会土質安定材料委員会, 薬液注入工法, 日本材料学会 233頁 (昭和43)
  39. 松尾新一郎, 河野伊一郎: 地下水規制のための地中ダムの構想 土木学会誌 53巻 9-13頁 (昭和43)

## 第 2 章 放射性核種の地下移動に関する理論的研究

### 2-1 従来の研究

この節では、主として放射性核種の地下移動を推定する理論について検討する。帯水層に放射性物質が入ると、土の持つイオン交換容量のため放射性核種は吸着され、やがて自己崩壊を起して消滅するが、地下水が流動している場合にはその一部が脱離して、わずかではあるが移動する。このような現象は、イオン交換樹脂塔の溶出曲線についてかなり詳しく研究が行なわれ、関係する主たる要因として土の物理化学的性状と、土粒子による水の拡散現象があげられている。従来の研究は円筒に詰めた人工のイオン交換樹脂に関するものが多く、複雑な地層の性状につき研究したものは少い。以下にイオン交換の理論と、地下水の拡散の理論で本問題に適用可能なものを概説する。

2-1-1 交換平衡 通常土粒子は陰に帯電し、陽イオンを吸着するものが多い。もっともきわめて稀には電氣的逆性土といわれる陽に帯電した土も存在し、陰イオンを吸着する。土を交換材 R とみると、地下水中の陽イオン A と土に吸着されている陽イオン B との間には、つぎのような交換が行なわれる。



ここに a, b は A, B の電荷である。この場合、 $A^+$ ,  $B^+$ ,  $B_aR$ ,  $A_bR$  の平衡時の濃度は、いろいろの人により研究されているが、大きくわけて、現象を吸着 (adsorption) と見るものと、イオン交換 (ion exchange) と見るものに別れる。

Wiegen(1) は、土のイオン吸着を Freundlich 吸着とみて次式を提案した。

$$q_A = p \left\{ \frac{C_A}{(C_A)_0} \right\}^{\frac{1}{n}} \quad (2-2)$$

ここに

$q_A$  = 固相中の陽イオン A の平衡濃度

$C_A$  = 液相中の陽イオン A の平衡濃度

$(C_A)_0$  = 液相中の陽イオン A の初期濃度

p, n = 定数

また、Vagelar(2)は Langmuir 吸着とみて (2-3) 式を示している。

$$q_A = \frac{x_A \cdot q_\infty}{x_A + p'} \quad (2-3)$$

ここに

$q_\infty$  = 土の吸着容量

$x_A$  = 土の単位重量当り吸着された陽イオンAの量

$p'$  = 定数

しかしこれらの吸着式は、陽イオンBを計算に入れていないため、Aの濃度が高いときか、Bの化学的濃度がきわめて低い、たとえば無担体の放射性同位元素の場合にのみ適用できるものである。

一方、現象をイオン交換と見る場合は質量作用の法則を適用して

$$K_{A-B'} = \frac{(B^{+b})^a (A_b R)^b}{(A^{+a})^b (B_a R)^a} \quad (2-4)$$

が一般的に示される。ここに

$(A^{+a}), (B^{+b})$  = 液相中の陽イオンA, Bの活性度 (activity)

$(A_b R), (B_a R)$  = 固相中の陽イオンA, Bの活性度

$K_{A-B'}$  = 平衡定数 (equilibrium constant)

活性度は種々の方法で研究されているが、活性度を濃度で近似し、液相に対する補正係数 $\phi$ 、固相に対する補正係数 $\pi$ を入れて

$$K_{A-B'} = \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^b \cdot q_B^a} \cdot \phi \cdot \pi$$

と、活性度の代わりに濃度で  $K_{A-B}$  を表示する。液相に対する補正係数 $\phi$ は

$$\phi = \frac{r_B^a}{r_A^b} \quad (2-5)$$

であって、 $r_A, r_B$  はA, Bの活性度係数とよばれるものであり (3, 4, 5, 6), 溶液が希薄な場合は  $a=b$  のとき  $\phi$  は 1 に近い値をとる。しかし  $a \neq b$  すなわち非対称の交換のときには、 $\phi$  は 1 にはならない。

固相に対する補正係数 $\pi$ は、液相の場合よりはるかに複雑であるが、Krishnamoorthy と Overstreet (7) は、多価陽イオンの吸着が結晶格子中の交換の座の接近によって定まるといふ仮定を用いて統計的に

$$\pi = \left( \frac{a+1}{2} a \cdot q_A + \frac{b+1}{2} b \cdot q_B \right)^{a-b} \quad (2-6)$$

を提唱した。(2-6)を(2-4)に代入して、

$$K''_{A-B} = \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^b \cdot q_B^a} \phi \left\{ \frac{a+1}{2} a q_A + \frac{b+1}{2} b q_B \right\}^{a-b} \quad (2-7)$$

$$= K_{A-B} \phi \left\{ \frac{a+1}{2} a q_A + \frac{b+1}{2} b \cdot q_B \right\}^{a-b} \quad (2-7a)$$

によって計算される  $K''$  を Krishnamoorthy-Overstreet の定数という。また

$$K_{A-B} = \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^b \cdot q_B^a} \quad (2-8)$$

を質量作用定数 (Mass-action constant) とよぶ。Krishnamoorthy-Overstreet の理論を使えば、希薄溶液の対称交換 ( $a=b$ ) の場合には equilibrium constant  $K''_{A-B}$  と mass action constant  $K_{A-B}$  は等しくなる。

$$K''_{A-B} = K_{A-B} = \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^b \cdot q_B^a} \quad (2-9)$$

Hiester と Vermeulen (8) は、解析上都合がよいように、非対称性の場合

$$K'''_{A-B} = \left\{ \frac{C_B^a \cdot q_A^b}{C_A^b \cdot q_B^a} \left( \frac{q_A + q_B}{C_A + C_B} \right)^{a-b} \right\}^{\frac{2}{a+b}} \quad (2-10)$$

$$= \left\{ K_{A-B} \left( \frac{q_A + q_B}{C_0} \right)^{a-b} \right\}^{\frac{2}{a+b}} \quad (2-10a)$$

を提案した。ここに  $C_0$  は液相中の全溶質濃度である。Hiester と Vermeulen の場合は  $K'''$  を理論的に求めたものでなく、イオン交換筒の溶出曲線を解析する上に、数学上便利なように近似したにすぎない。

いま、2価の陽イオンの対称交換 ( $a=b=2$ ) の場合を考えると、 $\phi \doteq 1$  と仮定して

$$K'''_{A-B} = \sqrt{K'_{A-B}}, \quad K'' = K'$$

となる。

$K$  の値は、溶液と固相中のイオンの濃度、pH、温度、圧力などに関係するが、 $a=b$  の対称交換の場合は、 $K$  はあまり変動しない。Duncan と Lister (9) は、イオン交換樹脂 Dowex-50 を用いて、Na と H イオン間の交換のときの  $K_{Na-H}$  の値を、図-2.1 のように示しているが、 $K_{Na-H}$  は  $q_{Na}$  の小さい場合を除いてほぼ一定である。Cohen と Garilledreau (10) はフランスの Sacley 原子力研究所の土を用いて、Ca-Sr の2価対称交換の場合の  $K$  に及ぼす Calcium の濃度  $C_{Ca}$  を図-2.2 のように示した。この場合も  $K$  はほぼ一定とみられる。ところが  $a \neq b$  の場合は、 $K$  ははげしく変動する。Ewing (11) は、米国西岸 Meyer 地方の砂を用いて、Cs-Ca 間の交換平衡を研究したが、図-2.3 に示すように、カルシウムの中濃度が10倍になると、 $K_{Cs-Ca}$  の値は10倍以上に変化

している。もっとも彼は(2-7)や(2-10)式を用いて $K''$ 、 $K'''$ を計算してみたが、その変動巾は図-2.4に示すようにやはり大きく、 $K$ 値に比して改善はみられなかったと述べている。

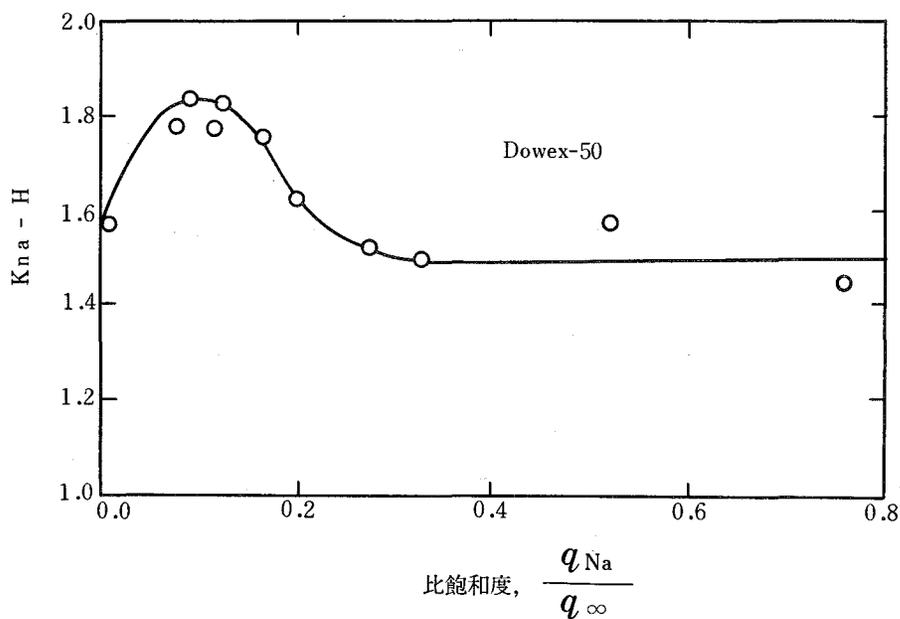


図-2.1  $K_{Na-H}$ に及ぼすNa濃度の影響  
Duncan and Lister(9)

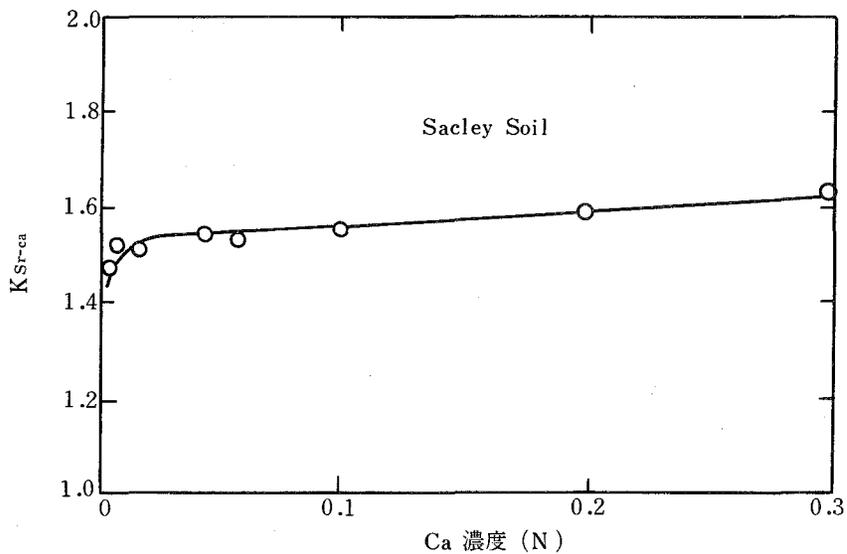


図-2.2  $K_{Sr-Ca}$ に及ぼすCa濃度の影響  
Cohen and Garilledreau(10)

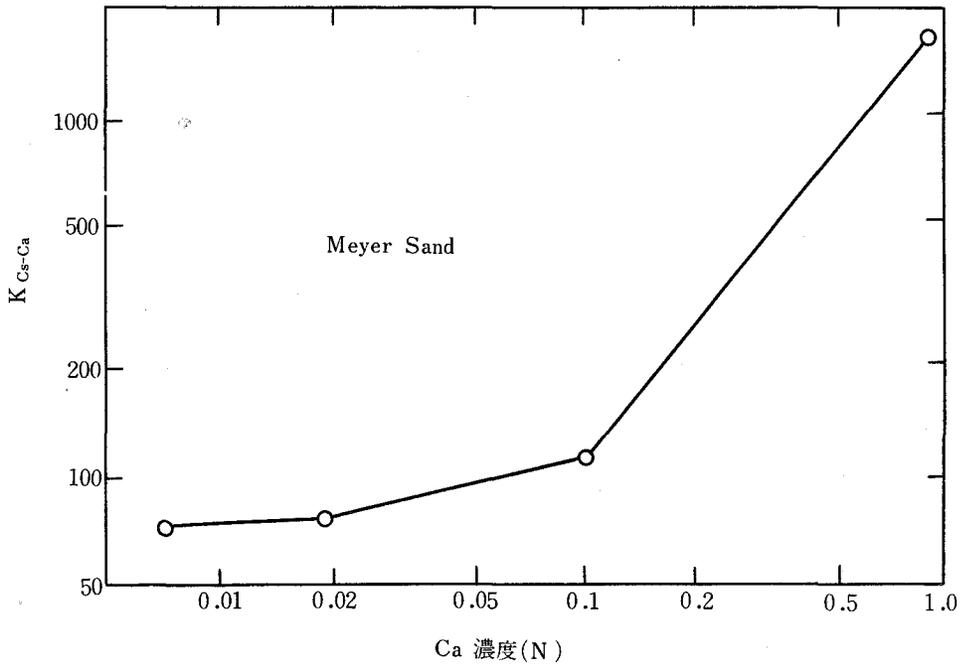


図-2.3  $K_{Cs-Ca}$  に及ぼす Ca 濃度の影響  
Ewing(11)

2-1-2 交換速度 交換速度を最初に定量的に示したのは Kressman(12) であって、  
図-2.5のように、交換速度は  $\sqrt{t}$  に比例することを実証した。

$$\frac{q_A}{q_\infty} = a\sqrt{t} \quad (2-11)$$

ここに  $q_\infty$  = 交換容量

$t$  = 時間

しかし、 $a$ の値は、 $C_A$ 、 $C_B$ などにより変化する。Hiester and Vermeulen(8) は交換を律速する要素として、(1)外部拡散、(2)内部拡散、(3)交換反応の3つを考え、それぞれに速度式を与えている。

(1)外部拡散 水中にあるイオンAが固体表面に達する拡散と、固体表面上のイオンBが水中に出る拡散律速式は

$$\left(\frac{\partial q}{\partial t}\right)_{\text{ext}} = \frac{K_F \cdot a_F \cdot f}{q_\infty(1-f) \rho \left[1 + \frac{(r-1)q_A}{q_\infty}\right]} \left[ C_A (q_\infty - q_A) - r q_A (C_0 - C_A) \right] \quad (2-12)$$

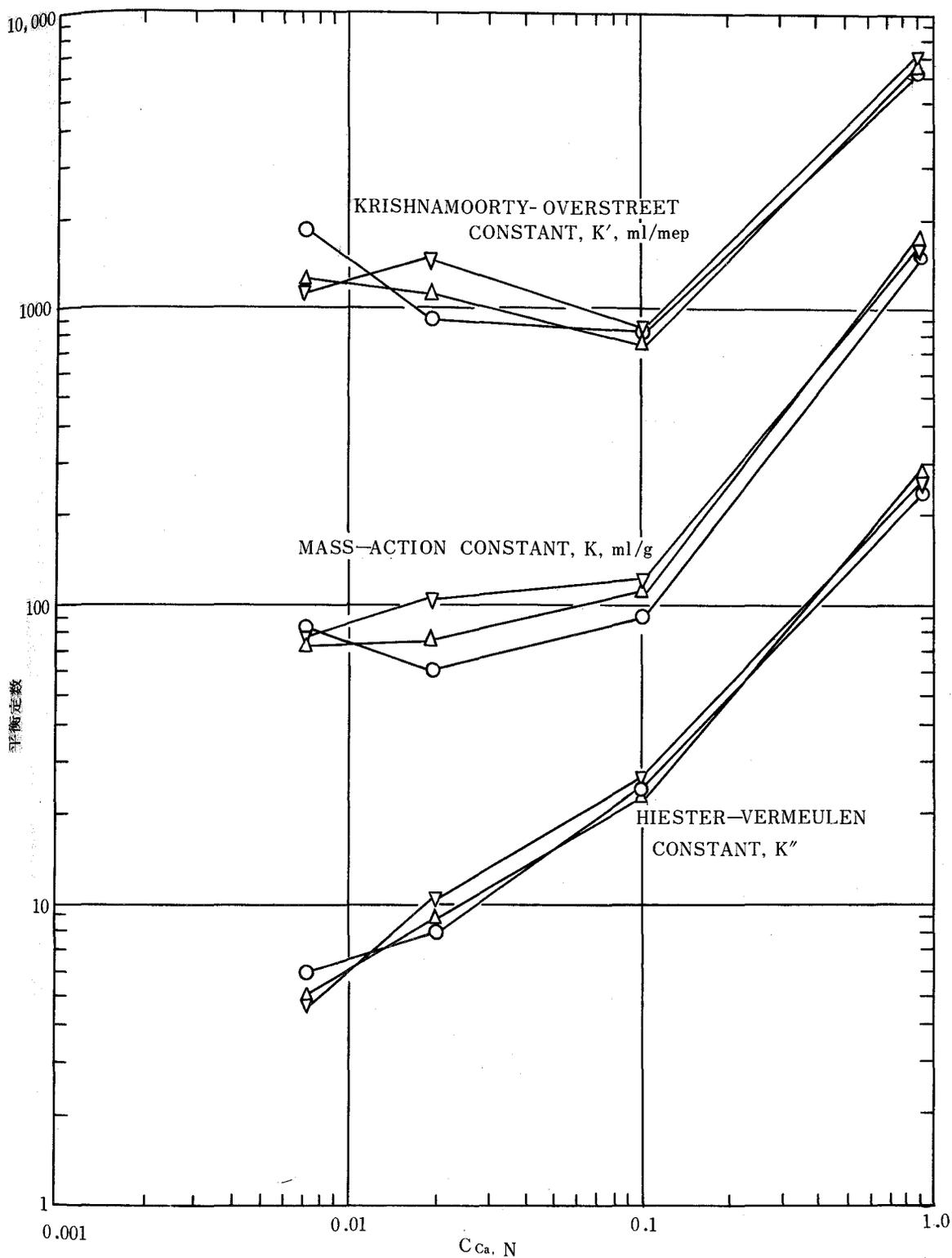


図-2.4 Cs-Ca系の平衡定数に及ぼすCa濃度の影響

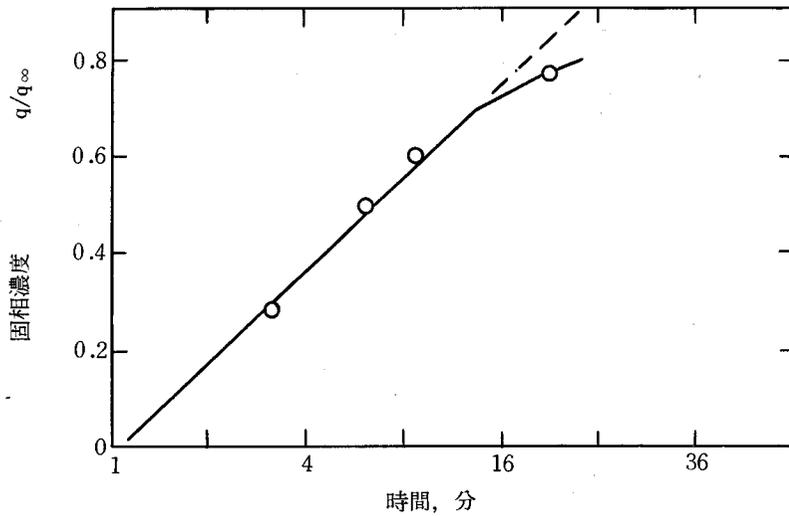


図-2.5 イオン交換速度  
Kressman(12)

(2)内部拡散 イオンAが固体表面から細孔を通して交換点 (bed)へ達する拡散と、イオンBの逆方向の拡散で、律速式は

$$\left(\frac{\partial q}{\partial t}\right)_{\text{int}} = \frac{K_F a_F \rho}{(1-r)C_A + rC_0} [C_A(q_\infty - q_A) - r q_A(C_0 - C_A)] \quad (2-13)$$

(3)反応 陽イオンBの固相からの脱離とその場所へのイオンAの吸着、律速式は

$$\left(\frac{\partial q}{\partial t}\right)_{\text{reac}} = K_{\text{kin}} [C_A(q_\infty - q_A) - r q_A(C_0 - C)] \quad (2-14)$$

ここに  $K_F$  = 液相移動制御に対する物質移動係数

$K_P$  = 固体粒子内での移動制御に対する物質移動係数

$K_{\text{kin}}$  = 2次反応が反応を律する場合の速度係数

$a_F$  = 内部拡散に対する単位体積当りの移動面積

$f$  = 媒体の空きき率

$\rho$  = 媒体の真の比重

$r$  = 質量作用定数により、式(2-21)で計算する。

これらの交換速度は、人工のイオン交換樹脂の交換反応には重要な意味を持つが、地下水の場合は流速が10cm/day程度で遅いので、常に固相と液相とは交換平衡にあるとみて良いようである。

2-1-3 多孔体中の水の拡散

一方向に流れる地下水中の拡散方程式は

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) \quad (2-15)$$

で示される。ここに

$D$  = 拡散係数

$x$  = 距離

$\bar{v}_x$  = 距離  $x$  における断面平均速度

である。Rifai等(13)は実験的に拡散係数は流速  $\bar{v}_x$  に比例する、すなわち

$$D = D_m \bar{v}_x \quad (2-16)$$

なる関係を見出した。ここに

$D_m = \bar{v}_x$  が  $1 \text{ cm/day}$  のときの媒体の拡散係数

de Jong(14) は図-2.6に示すように、多孔体中の空隙を長さ  $L$  の pipe 網で近似して、流れの方向の拡散係数  $D_x$  と、それに直角な方向の拡散係数  $D_y$  とを(2-17)、(2-18)で近似した。

$$D_x = \frac{1}{6} \left( \lambda + \frac{3}{4} - \ln r \right) L \quad (2-17)$$

$$D_y = \frac{3L}{16} \quad (2-18)$$

ここに  $\lambda$  は  $N = \frac{1}{2} e^{2\lambda} / \left( \lambda - \frac{3}{2} \ln \lambda \right)$  を解いて得られる数で、 $N$  は1つの粒子を覆う pipe の数である。 $\ln r$  はオイラーの定数で、0.577ととる。

2-1-4 イオン交換塔の流出曲線

固定床中に一方向に液を流すイオン交換筒の流出曲線

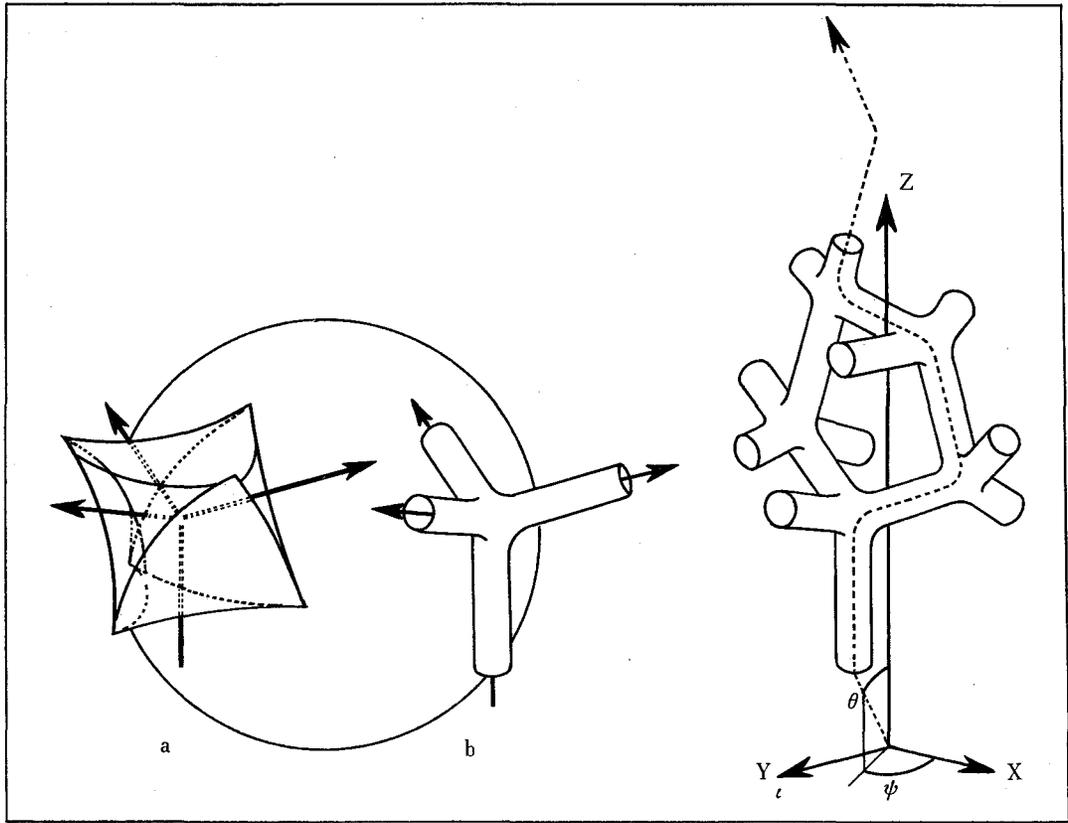
は、放射性核種の地中移動の推定と関連して重要な意味を持っているが、今まで、主として化学工学の方面で研究がなされてきた。中でも、H.C.Thomas(15), Hiester-Vermeulen(8)の研究が有力である。彼等は水理学的な拡散を無視して、連続式として

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1-f}{f} \rho \frac{\partial q}{\partial t} + \bar{v}_x \frac{\partial C}{\partial x} = 0 \quad (2-19)$$

をとり上げ、連続式は外部拡散、内部拡散、反応の式を一般化して

$$\frac{\partial q}{\partial t} = k \left\{ C (q_\infty - q) - r q (C_0 - C) \right\} \frac{f}{q_\infty \rho} \quad (2-20)$$

を用いた。



- (a) 4つの球によってできる8面体の空けき
- (b) (a)を4本の分岐管で置きかえる
- (c) 多孔体内の流れ

図-2.6 多孔体内流体移動のモデル化 de Jong(14)

ここに  $q_{\infty}$  = 交換容量

$C_0$  = 原水中の陽イオンの濃度

$\rho$  = 交換剤の比重

$f$  = 交換剤の空けき率

$k$  = 一般的な速度係数

であり、非対称性交換の場合にも拡張して、 $r$ は

$$r = \frac{1}{1 + (K''' - 1) \cdot \frac{(CA)_0}{C_0}} \quad (2-21)$$

ここに  $(CA)_0$  = 希薄成分の流入液濃度である。

単一成分が交換体を飽和していく場合には、 $(CA)_0 = C_0$  ,  $r = \frac{1}{K}$  が成立する。

Hiester と Vermeulen は (19), (20), (21) 式を連立させ、さらに流出量パラメーター

$$T = \frac{C_0(x - \bar{v}_x t f)}{q_{\infty} \cdot \rho \cdot \bar{v}_x t}$$

と、容量パラメーター

$$s = \frac{k \bar{v}_x t f}{\ell}$$

を用いて、近似解を得、これを図示している。ところで、一般的な速度係数  $k$  の値は、外部速度係数  $k_{ext}$  と、内部速度係数  $k_{int}$  とが関係するときは

$$\frac{1}{k} = \frac{1}{k_{ext}} + \frac{1}{k_{int}} \quad (2-22)$$

で求められるが、 $k_{ext}$ ,  $k_{int}$  は (2-12), (2-13) より

$$k_{ext} = \frac{k_F a_F}{1 + (r-1) \frac{q_A}{q_{\infty}}}$$

$$k_{int} = \frac{k_P a_P}{(1-r) \frac{CA}{C_0} + r} \cdot \frac{q_{\infty} \rho}{C_0 f}$$

ここに  $F, P$  = 各々、液相、固相を示す

$k_F, k_P$  = 物質移動係数 ( $cm/min$ )

$a_F, a_P$  = 単位みかけ容積当りの表面積 ( $cm^2$ )

Hiester 等 (16) は一定粒径の球状イオン交換樹脂に対し、 $k_F, k_P$  の値として

$$k_F = \sqrt{\frac{D_F S}{d_P}} \quad (2-23)$$

$$k_P = \frac{25 D_P}{d_P} \quad (2-24)$$

を与えている。

ここに  $D_F, D_P$  = 液相、固相中のイオン拡散速度

$d_P$  = 粒子の直径

である。 $D_F$  は約  $10^{-5} cm^2/sec$  であり、 $D_P/D_F$  の比は錯塩を形成していないイオンに対して、双方のイオン価が1価のときは0.2、2価-2価イオン、または2価-1価イオンの交換のときは0.1、

どちらか一方、あるいは両方のイオンが3価のときは0.06をとる。

ところで、HiesterとVermeulen(8)は、イオン交換の速度を重視し、水理学的な拡散を無視したが、流速が低く、いたるところで液相と固相とは交換平衡にあると仮定してよい地下水の場合には、逆にイオン交換の速度項を無視し、水理学的な拡散を考えた方がよいと思われる。OgataとBanks(17)は、基本式として

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial q}{\partial t} + \bar{v}_x \frac{\partial C}{\partial x} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (2-25)$$

$$\frac{\partial q}{\partial t} = k(C - mq) \quad (2-26)$$

(k, mは定数)

を用いて、条件

$$\left. \begin{aligned} C(0, t) &= C_0 \\ C(x, 0) &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (2-27)$$

のもとに、この式を解き

$$\begin{aligned} \frac{C}{C_0} &= \frac{1}{2} \exp\left[\left(1-M\right) \frac{\bar{v}_x x}{2D} - kmt\right] \operatorname{erfc}\left[\left(1 - \frac{\bar{v}_x t}{x} M\right) \frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right] \\ &+ \frac{1}{2} \exp\left[\left(1+M\right) \frac{\bar{v}_x x}{2D} - kmt\right] \operatorname{erfc}\left[\left(1 + \frac{\bar{v}_x t}{x} M\right) \frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right] \end{aligned} \quad (2-28)$$

$$\text{ここに } M = \sqrt{1 + \frac{4Dk}{\bar{v}_x^2}} \quad (2-29)$$

を得ている。

これらの理論は、固定床イオン交換樹脂に対して考えられたものであり、複雑な流れを示す地下流にそのまま適用できぬ事が多い。

## 2-2 地下水の挙動と、放射性核種の挙動

3次元のひろがりを持つ地層における放射性核種の移動は、式(2-30)で書き表わせる。式の誘導は、付録-1に示す。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} &= \frac{\partial}{\partial x} \left( D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \\ &- \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \end{aligned} \quad (2-30)$$

この式は、濃度変化の時間的な割合  $\left[ \frac{\partial C}{\partial t} \right]$  が 固相の吸着  $\left[ \frac{1-f}{f} \rho \frac{\partial q}{\partial t} \right]$ 、粘性項  $\left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \right]$ 、水理的な輸送項  $\left[ \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) + \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) + \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \right]$

によって表わされるもので、Ogata-Banks の式 (2-25) を 3次元に拡張したものと見られ、また粘性項を省略して、1次元の場合を考えると Hiester と Vermeulen の式 (2-19) に一致する。

地下水の流速はきわめて遅いから、地下水中に含まれるイオンと土とは、常に交換平衡にあると見てよい。さらに漏出した放射性核種が多量の塩類をとまわぬ場合、あるいは地下水と水質的にあまり変らぬ廃水を地下注入処理した場合には、放射性核種は化学的濃度が低いため地下水と水との交換平衡を乱さない。たとえば、放射性 Strontium  $Sr^*$  (\*は放射性物質であることを示す) が漏出すると、地下水中に主として含まれる陽イオン、たとえば Ca とつぎのような交換平衡に達する。

$$\frac{q_{Sr^*}}{K_{Sr-Ca} \cdot C_{Sr^*}} = \frac{q_{Sr}}{K_{Sr-Ca} \cdot C_{Sr}} = \frac{q_{Ca}}{C_{Ca}} \quad (2-31)$$

もし、地下水中に主として含まれるイオンの濃度  $C_{Ca}$  が一定であれば

$$q_{Sr^*} = K_{Sr-Ca} \cdot \frac{q_{Ca}}{C_{Ca}} \cdot C_{Sr^*} = k_d C_{Sr^*} \quad (2-32)$$

または

$$k_d = K_{Sr-Ca} \frac{q_{Ca}}{C_{Ca}} = \text{一定} \quad (2-33)$$

ここに  $k_d$  は分配係数 (distribution factor) とよばれるものである。

セシウムのように 1価のイオンを考えると、地下水中に主として含まれる 1価のイオン、たとえば  $Na$  を基準にとればよい。

$$\frac{q_{Cs^*}}{K_{Cs-Na} C_{Cs^*}} = \frac{q_{Cs}}{K_{Cs-Na} C_{Cs}} = \frac{q_{Na}}{C_{Na}} \quad (2-34)$$

$$q_{Cs^*} = k_d \cdot C_{Cs^*}$$

ここに  $k_d = K_{Cs-Na} \cdot \frac{q_{Na}}{C_{Na}} \quad (2-35)$

一般的には

$$q = k_d C \quad (2-36)$$

と書けるから(2-30)式は

$$\begin{aligned} \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \right\} \frac{\partial C}{\partial t} = & \frac{\partial}{\partial x} \left( D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) \\ & + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \end{aligned} \quad (2-37)$$

となる。この式を適当な初期条件と境界条件を用いて解けば、Cおよびqが位置的、時間的に求まる。しかし、一般に地層は局所的に均一性に乏しいものが多く、また地下水の流れも、流速、流向とも一定でなく、位置的、時間的な変化が大きい。

このために、(2-37)に現実の地層に適合した境界条件を与えることはきわめて困難であり、現象を大胆に簡易化しなければならない。また、そのようにして得られた解は、地下水中における放射性核種の移動を推定するには無力なものになっている。De Lagna(18)によれば、イオン交換樹脂塔に関して求められたHiesterとVermeulenの理論をあてはめ得るような地層は、ほとんどどこにも存在しないという。このような地層の複雑な性状を考えて、地下水帯水層中の放射性核種の移動に関しては、(2-27)式を解析的に解くことはさておき、地下水流との関連を追求することにする(19, 20, 21)。

いま、時間に関する変換

$$t = \left\{ 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \right\} T \quad (2-38)$$

により、新しい時間Tを導入すれば、(2-37)は

$$\begin{aligned} \frac{\partial C}{\partial T} = & \frac{\partial}{\partial x} \left( D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) \\ & - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \end{aligned} \quad (2-39)$$

となり、これは吸着のない、すなわち地下水の流れそのものを表わす式に他ならない。この変換は今後重要な意味を持つので、

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \quad (2-40)$$

と置き、以後  $K_f$  factor とよぶ。

一次元定常流のように、(2-39)の解が利用できるときは、(2-37)の解は(2-39)から求める。一次元固定床イオン交換樹脂塔の場合、

$$\left. \begin{aligned} C(x, 0) &= 0 \\ C(0, t) &= C_0 \end{aligned} \right\} \quad (2-27)$$

なる条件を用いて、(2-39)を $D_x, \bar{v}_x$ がともに一定として解くと

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left[ 1 - \operatorname{erf} \frac{x - \bar{v}_x T}{2 \sqrt{D_m \bar{v}_x T}} \right] \quad (2-41)$$

であるから、放射性核種の移動は

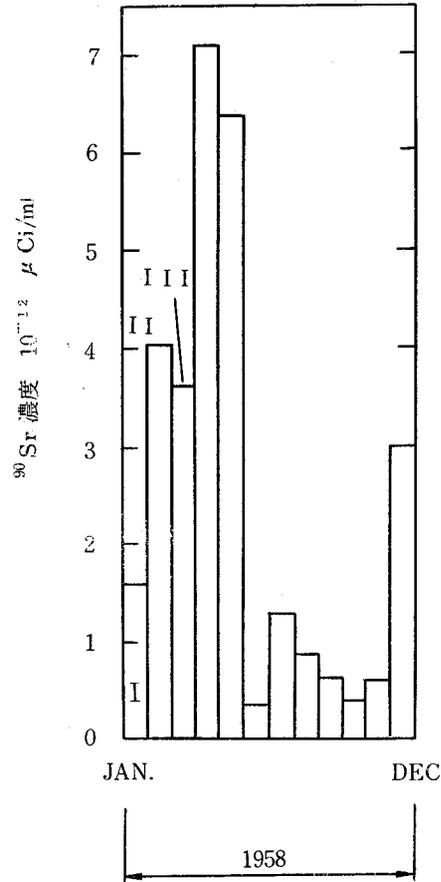
$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left[ 1 - \operatorname{erf} \frac{x - \left\{ \bar{v}_x t / \left( 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \right) \right\}}{2 \sqrt{D_m \bar{v}_x t / \left( 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \right)}} \right] \quad (2-42)$$

となる。

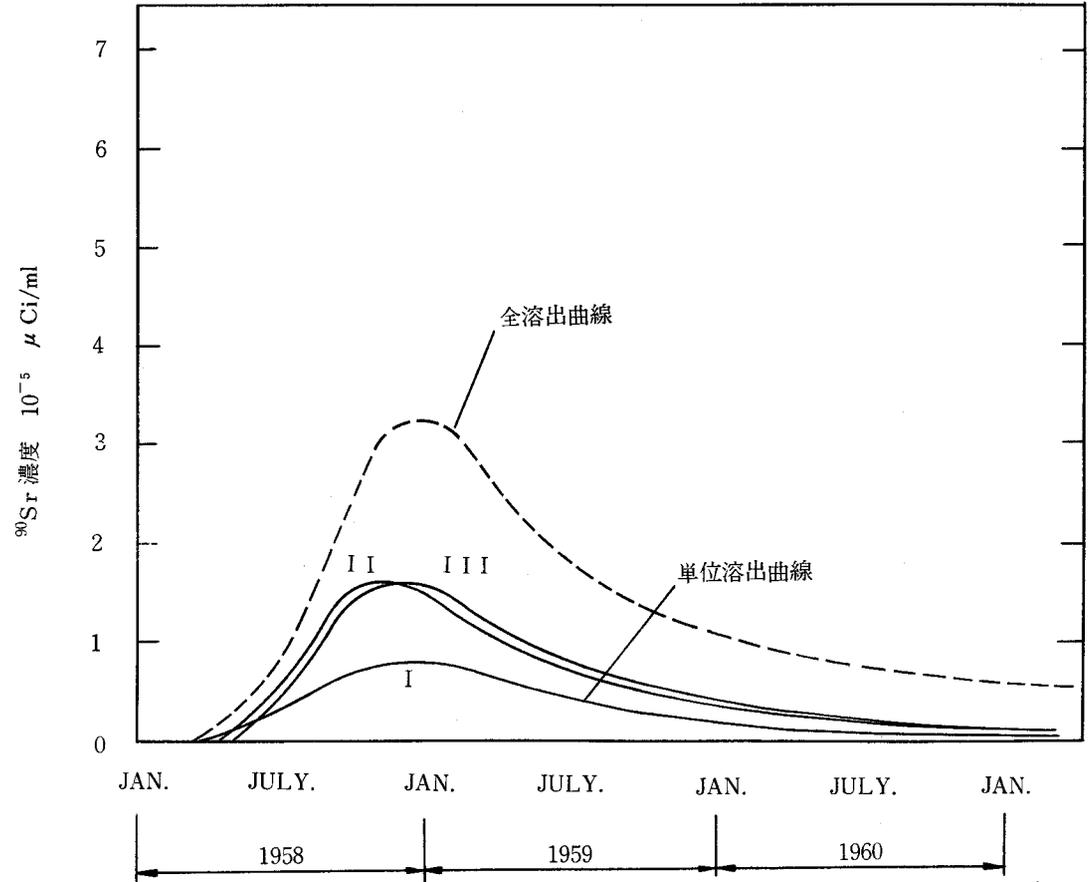
一方、(2-39)の解が求まらぬときは、水のトレーサー、たとえば三重水素水を用いて地下水の動きを追跡し、求められた結果の時間を(2-40)により変換して、地下水の動きから放射性核種の動きを推定する。

まず、時間の変換を初期条件に適用する。図-2.7は、米国IdahoのNRTS (National Reactor Testing Station)で地中に放出された放射能のうち、1958年の分をとり出したものである(22)。この構成放射性核種のうち、 $^{90}\text{Sr}$ の占める量が同図aのようであったとする。地層の空けき率 $f$ 、比重 $\rho$ 、 $\text{Sr}$ に対する分配係数 $k_d$ を測定して $K_f = 30$ を得たとすると、1ヶ月が1日、1年が12日に縮小されるから、12日間水のトレーサー、たとえば三重水素水を、毎日の濃度がそれに対応する $^{90}\text{Sr}$ の濃度に比例するように12日間注入して、観測井における三重水素水の出現を図-2.7(b)の全溶出量曲線のように求め、時間の目盛を日から月に再びもどせば、これが $^{90}\text{Sr}$ のその観測井に出現する濃度-時間曲線となる。 $^{90}\text{Sr}$ 以外に放射性物質があれば、その元素に対する $k_d$ 値を求め、前と同様の操作をくり返せばよい。地下水のトレーサーに比して、放射性物質の移動速度は通常数十分の一であるから、放射性核種が観測井に現われるよりはるか以前に、その溶出を予測することができる。

ところで、式(2-30)の形から見て重畳の原理が適用できるので、地下処分と共に単位の間、単位の濃度の水のトレーサーを入れて、各観測井への溶出応答を調査すれば、あとは洪水追跡のUnit Hydrographと同様に、その情報を用いて複雑な初期条件に対する溶出曲線を推定できる。すなわち、図-2.7(a)で1日の $^{90}\text{Sr}$ 処分濃度が $1.5 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であったとき、これに対する三重水素水トレーサーの、ある観測井への流出が同図bのIのようであったとすると、2日の $^{90}\text{Sr}$ 平均濃度 $4 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ に対しては、図-2.7(b)のIの曲線を $\frac{4 \times 10^{-4}}{1.5 \times 10^{-4}} = \frac{8}{3}$ 倍して1ヶ月分時間をおくれば、2月の地中処分に対する流出曲線IIが得られる。以下同様にして、3, 4, 5, ……12月の地中処分に対応する水トレーサーの溶出曲線を推定し、そのすべてを加え合わせれば、求める



a 地中処分した  $^{90}\text{Sr}$  の濃度



b 推定溶出曲線

全溶出曲線になるはずである。

単位時間の水トレーサー注入に対する溶出曲線は、連続注入の場合の溶出曲線を時間で微分して求めることもできる。図-2・8でC<sub>0</sub>なる濃度一定のトレーサーを地下処分したときの、ある地点への流出曲線をC<sub>4</sub>、またΔt時間注入処分したときの流出曲線を、C<sub>3</sub>としたとき

$$\Delta t \cdot C_4(x, y, z, t) = \int C_3(x, y, z, t) dt \quad (2-43)$$

$$\text{または} \quad \Delta t \cdot \frac{\partial C_4}{\partial t} = C_3 \quad (2-44)$$

図-2・8(c)のように、注入時間が短くて連続注入とみなせない場合でも、単位の流出曲線C<sub>3</sub>は全流出曲線C<sub>4</sub>から同図(d)に示すように

$$C_3(x, y, z, t_1) = C_4(x, y, z, t_1 - t_2) - \left. \frac{dC_4}{dt} \right|_{t=t_1} \cdot \Delta t \quad (2-45)$$

で求まる。ここに注入時間は $0 \leq t \leq t_2$ である。この関係は簡単に証明できる。いまC<sub>4</sub>(x, y, z, t<sub>1</sub> - Δt)とC<sub>4</sub>(x, y, z, t<sub>1</sub>)を考えたとき、その溶出曲線は、 $0 \leq t \leq t_2$ の間に処分された放射性物質により生ずるから

$$\Delta t \cdot C_4(t_1 - \Delta t) = \int_{t_1 - t_2 - \Delta t}^{t_1 - \Delta t} C_3 dt$$

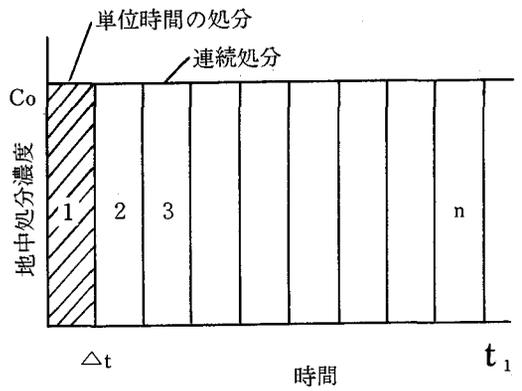
$$\Delta t \cdot C_4(t_1) = \int_{t_1 - t_2}^{t_1} C_3 dt$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{dC_4}{dt} \right|_{t=t_1} &= \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{C_4(t_1) - C_4(t_1 - \Delta t)}{\Delta t} \\ &= \frac{1}{\Delta t} \left\{ \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{\int_{t_2 - t_1}^{t_1} C_3 dt - \int_{t_1 - t_2 - \Delta t}^{t_1 - \Delta t} C_3 dt}{\Delta t} \right\} \\ &= \frac{1}{\Delta t} \left\{ \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{\int_{t_1 - t_2}^{t_1 - t_2} C_3 dt - \int_{t_1 - \Delta t}^{t_1} C_3 dt}{\Delta t} \right\} \\ &= \frac{1}{\Delta t} \left\{ \lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{\Delta t \cdot C_3(t_1 - t_2) - \Delta t C_3(t_1)}{\Delta t} \right\} \\ &= \frac{1}{\Delta t} \left\{ C_3(t_1 - t_2) - C_3(t_1) \right\} \end{aligned}$$

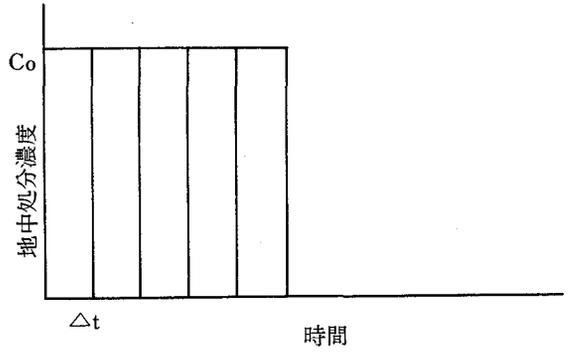
したがって

$$C_3(x, y, z, t_1) = C_3(x, y, z, t_1 - t_2) - \Delta t \left. \frac{dC_4}{dt} \right|_{t=t_1}$$

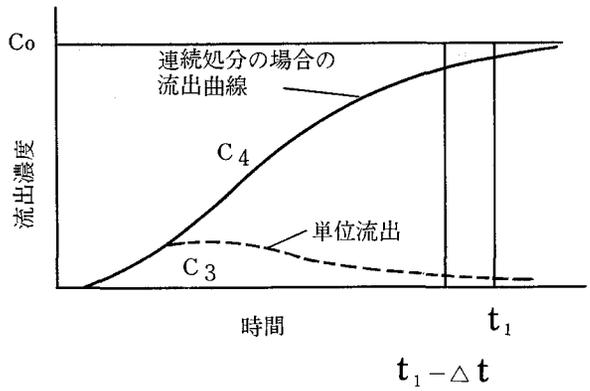
溶出の始まりから計算を開始すれば、全単位溶出曲線が求まる。



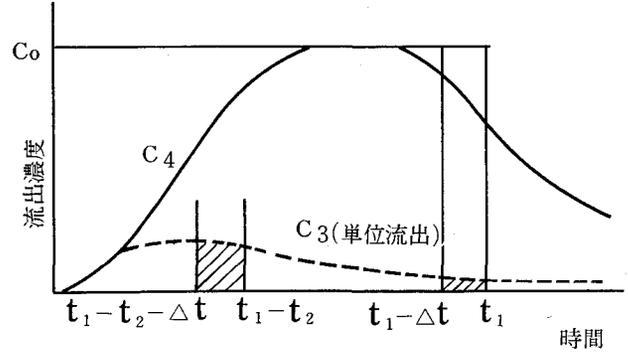
a 処分状態



c 処分状態



b 流出曲線 (aに対する)



d 流出曲線 (cに対する)

図-2.8 単位流出曲線の求め方

この方法を従来の方法と比較してみると、

- (1) Thomas(15), Hiester and Vermeulen(8), Ogata and Banks(17)等は、固定床に対する1次元定常流について解を求めたもので、複雑な挙動をする地下水中の放射性核種の動きに対して適用できない。これに対して著者の方法は、土の構成が均質で、流れが定常、すなわち流線網が一定であるなら、どんな系にも適用できる。
- (2) この方法は半経験的であるから、水の動きを決めるための野外測定を必要とする。この点から見ると、土や廃水の物理化学的性状のみで溶出曲線を求める、Hiester and Vermeulenの理論等の方が、より基礎的であるといえる。
- (3) この方法では流速が遅く、固相と液相は常に交換平衡にあると仮定しているから、地下水の場合にのみ適用できるものである。これに対し、Hiester and Vermeulenの研究等は、交換速度も考えに入れているから、イオン交換樹脂によるろ過などの流速の大きい場合にも適用できる。
- (4) Rifai等(13), de Jong(14), Ogata-Banks(17)の理論とくらべると、この方法では土粒子による水理学的な拡散係数 $D$ (または $D_m$ )を求める必要がない。拡散係数 $D$ は、流線が複雑なときは特に求めるのが困難である。
- (5) 従来の理論は、不均質な媒体中の非定常な流れに対しては全く無力である。これに対して著者の方法は、このような場合に対し正確に適用することは不可能であるが、実用上許容できるほどの誤差で溶出を予測することができる。

なお、この方法とHiester-Vermeulenの理論、Ogata-Banksの理論との比較は第3章で詳しく行なり。

## 2-3 不均質で非定常な場合の考察

均一な地層の中を、一方向に一樣な地下水が、低い流速で流れるときは、上記の理論は適用しやすいが、そのような条件に合う場合はほとんど無いといってよく、多くの地層は多かれ少なかれ不均質である。このように、理論からはずれる条件として、化学的要因と、物理的要因とをあげることができる。

### 1. 化学的条件

- a 注入した水の化学的組成の時間的な変化
- b 土の物理化学的性質の位置的な変化

### 2. 物理的条件

- a 地質的構造の位置的变化
- b 流量、流線の時間的变化
- c 揚水井、あるいは地表への流出点のあるとき

つぎに、この各項目の影響について検討する。検討を容易にするために、一項目をとりあげたときは、

他の項目は均質であるとする。

1. a 注入水の化学的組成の変化 注入水中の全陽イオン濃度が増加（減少）すると、放射性物質の移動速度が高（低）まり、溶出濃度も増加（減少）する。分配係数  $k_d$  は放射性  $Sr^*$  と、地下水中の  $Ca$  とが交換平衡にあるとき

$$k_d = \frac{q_{Sr^*}}{C_{Sr^*}} = K_{Sr-Ca} \cdot \frac{q_{Ca}}{C_{Ca}}$$

で表わされるが、 $C_{Ca}$  が増加しても、 $q_{Ca}$  はそれと共に増加することはできないから、 $k_d$  は減少し、 $q_{Sr^*}$  も減少する。このため、 $K_f$  は減少し、放射性  $Sr$  の地下移動速度は高まる。一般に、多価イオンは1価のイオンより強く土に吸着されるから、 $Ca$  や  $Mg$  など2価イオンの濃度が増すと、土にすでに吸着されていた1価イオンと置きかわるから、1価の陽イオンの  $K_f$  が増し、移動速度が大巾に増加する。

これに対し、水中の  $Na$  や  $K$  の1価イオン濃度が増加しても、土に吸着されるイオンにそれ程大きい変化は無く、放射性  $Sr$  などの移動速度はあまり大きく変化しない。このように  $K_f$  は主として多価イオンの濃度の変化に大きく支配される。図-2・9は、 $Ca-Na$ 系で  $Ca$  濃度が変化したときの ( $k_d$ ) $_{Sr}$  の変化を試算したものである。

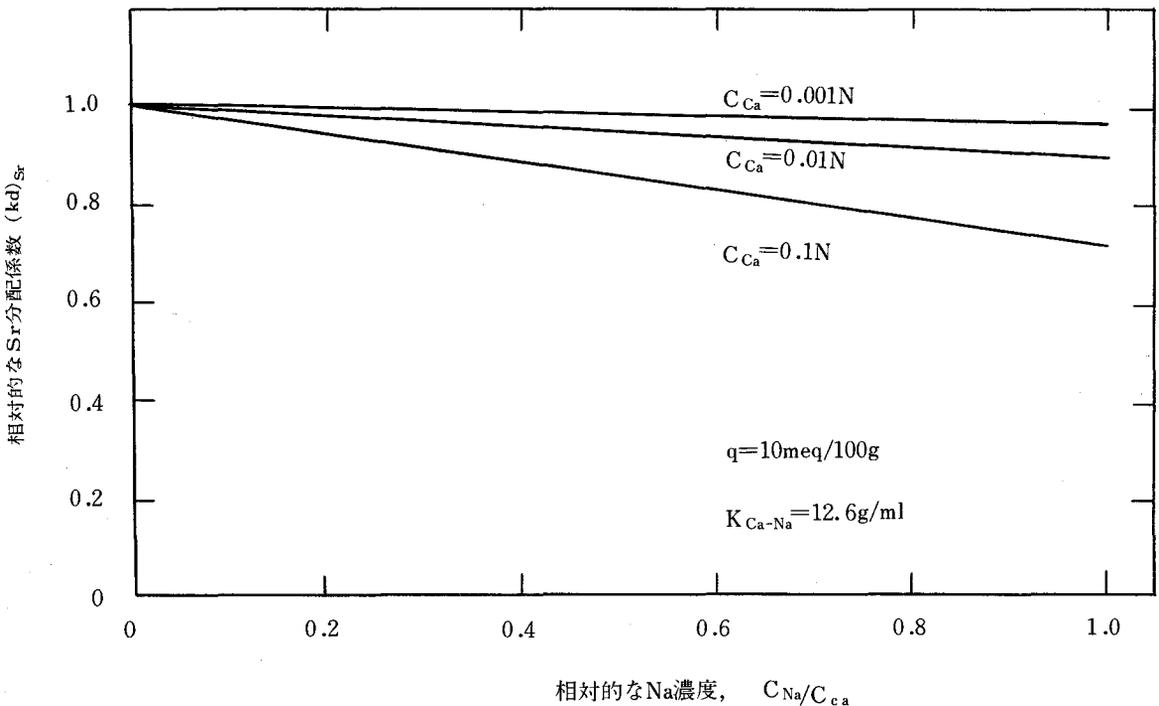


図-2・9  $Sr$  の分配係数に対する  $Na$  濃度の影響  $Sr-Ca-Na$ 系

1. b 土壤の物理化学的性質の位置的な変化 土のイオン交換容量は粒子の大きさ、粒子に含まれる鉱物の性質によって変る。Orcutt等(23)は表-2・1に示すような化石水組成中での砂岩のイオン交換容量を報告している。一般に粒子の大きさが小さければ、交換容量は大きい。質量作用定数もまた物質によって変るが、イオン交換容量が変化する程大きくは変化するしない。交換容量が大きく、質量作用定数も大きいと、 $K_f$  値は増加する。従って、放射性陽イオン移動速度は遅くなる。 $K_f$  が位置的に変化するときは、平均的、あるいは代表的な  $K_f$  を選ばねばならない。非均質性は単に位置的なものであるから、与えられた土壤に対して一つの  $K_f$  が設定できる。流線の最も重要な部分が集まるところ、例えば多井戸系の場合、注入井戸と揚水井戸とを結ぶ線の近くから試料土を得て、その平均値をもって代表  $K_f$  値とする。後述するように安全性を考えると、得られた  $K_f$  値のうち最小のものを採用すればよい。

表-2・1 化石水地層の交換容量

物 質	交換容量 (meq / 100g)	$K_{Sr-Ca}$
Coalinga	0.2	1.61
Dominguez	5.6	0.98
Lost Hills	14.1	1.40
Richfield	2.4	1.28
Rosecrans	4.3	1.26

Orcutt (23) より

2. a 土壤の非均質性 土壤の密度  $\rho$  が増加し、空げき率  $f$  が減少すると、 $K_f$  値は増加し、放射性核種の移動速度は増加する。砂や岩の密度  $\rho$  はほぼ一定で通常は約  $2.5 (g/cm^3)$  である。一方、土壤の空げき率  $f$  は著しく位置によって変化する。 $f$  が変化する時、 $f$  を  $(1-f)/f$  の形で含む  $K_f$  値はさらに大きく変化する。

空げき率、密度の変動は位置的なものであるから、地層につき代表的な値を設定できる。また、安全を考えれば多くの  $K_f$  値のうち最小のものを採用すればよい。土壤の透水性は直接的には  $K_f$  に影響を与えないが、高透水性地層のイオン交換容量は低いから、 $K_f$  は低い値に止まるのが普通である。

2. b 流線網 (Flow net) と流量の時間的变化 注入の速さ、揚水の速さが変化する時、流線網や地下水の流速が変化する。注入量、揚水量が釣り合い、流線網が変化するしない場合には、理論は適用可能だが、流線網が時間的に変化する時理論は適用できなくなる。

2. c 揚水井や地表への流出点のあるとき 揚水井戸のように、地下水を地中から除去する場合、あるいは、地表への流出がある場合には、流線はその点に集中する。この場合、土壤が一様でない時、各流管の  $K_f$  値は異なる。ところで、高い透水性の地層は、通常低い  $K_f$  値を有し、この地帯を通ってきた水が、揚水井に出現する放射性物質の初期の部分となるから、高透水性の地層の  $K_f$  を地層全体の代

表値として選ぶのも、一つの方法である。

国際原子力機構 ( I A E A ) の Safety Series № 15 Radioactive Waste Disposal into the Ground は 3 頁にわたって、著者の理論を詳しく紹介しているが、この中で、本方法の適用範囲として、

- ( i ) 地層の空けき率  $f$  が一定であること
- ( ii ) 分配係数  $k_d$  が時間的、位置的に変化しないこと
- ( iii ) 固相と液相との間に、平衡状態が存在すること
- ( iv ) 流線が時間的に変化しないこと

の 4 つをあげ、厳密に上記の 4 項を適用できるような地層は無いが、十分実用に耐える解釈をすることのできる地層は存在すると述べている。著者としては、これに

- ( v ) 石灰石など、溶解性の岩石を含まぬこと
- をつけ加えれば完全と思う。

#### 参 考 文 献

1. Wiegner, G. Physicochemical properties of clays. I. Base exchange or ionic exchange, J.Soc. Chem. Ind. 50. 65-71 (1931)
2. Nachod, F. C., Ion Exchange. Academic Press, New York., (1949)
3. Lewis, G. N., and Randall, M., Thermodynamics and the Free Energy of Chemical Substances. McGraw-Hill Book Co., Inc., (1923)
4. Latimer, W.M., The Oxidation States of the Elements and their Potentials in Aqueous Solutions, Prentice-Hall, (1938)
5. Rios, E.Q., and Ruiz, C., Propiedades termodinamicas del cambio ionico. Anales de Edafologia y Fisiologia Vegetal, 13, 11, 791-841, (1954)
6. Harned, H.S., and Owen, B.B., The Physical Chemistry of Electrolytic Solutions. Reinhold Publishing Corp., (1950)

7. Krishnamoorthy, C., and R. Overstreet. Theory of ion-exchange relationships. Soil Sci., 68, 307-315, (1949)
8. Hiester, N.K., and T. Vermeulen. Saturation performance of ion-exchange and adsorption columns, Chem. Eng. Progress, 48 505((1952)
9. Dunkan, J.F., and B.A.Lister. Ion Exchange Studies I. The sodium-hydrogen system, J.Am. Chem. Soc., 71 3294 (1949)
10. Cohen, P., and C. Gailledreau, Preliminary Investigation of the Adsorption of Radiostrontium in Sacley Soil, Ground Disposal of Radioactive Wastes, Conference Proceedings, Berkeley, Calif., Aug. 25-27, 1959. San. Eng. Research Lab., Univ. of Calif., Berkeley, 90-99 (1961)
11. Ewing, B.B., Development of Design Criteria for Under-Ground Disposal of Radioactive Wastes, Doctoral Thesis, Univ. of Calif., Berkeley, (1961)
12. Kressman, T.R., and J.A. Kitchener, Cation exchange with a synthetic phenolsulphonate resin, Disc. Faraday Soc., No.7 90 (1949)
13. Rifai, M.N.E., W.J. Kaufman, and D.K.Todd, Dispersion Phenomena in Laminar Flow Through Porous Media, San, Eng. Research Lab., Univ. of Calif., Berkeley, (1956)
14. Jong, J de, Dispersion in granular deposits, Trans. Am. Geophys. Union, 37 595 (1956)
15. Thomas, H.C. Heterogeneous ion exchange in a flowing system. J.Am. Chem. Soc., 66 1664 (1944)
16. Hiester, N. K. et al, Ion exchange of trace components, Ind. Eng. Chem. 45 2402 (1953)
17. Ogata, A., and R.B.Banks, Dispersion of fluid flow in porous media, Doctoral Thesis, North Western University, (1959)
18. De Lagnaよりの私信

19. Inoue, Y. and W.J.Kaufman, Dispersion relations in injection disposal of radioactive wastes, US AEC Rep. TID-7621 131-139 (1961)
20. Inoue, Y. and W.J.Kaufman, Studies of injection disposal, US AEC Rep. TID-7628 303-321 (1962)
21. Inoue, Y. and W.J.Kaufman, Prediction of movement of radionuclides in solution through porous media, Hlth Phys. 9 705-715 (1963)
22. Schmaltz, B.L., Operating practices, experiences and problems at the National Reactor Testing Station, US AEC Report, TID-7621 17-34 (1961)
23. Orcutt, R.G., W.J.Kaufman and G.Klein, The Movement of Radiostrontium Through Natural Porous Media, San. Eng. Research Lab., Univ. of Calif., Berkeley, (1956)

## 第 3 章 放射性核種の地下移動に関する実験的研究

### 3-1 概 説

第 2 章で吸着性のある多孔体中を放射性イオンを含む水が流れるときの流体の流れと、放射性イオンの移動との関連を検討したが、本章ではこれを実験的に検証する。まず、従来の研究が主として対照としていたカラム内のイオンの移動を検討するために、Green Sand (緑砂) を詰めた円筒に  $^{90}\text{Sr}$  を含む水を通水して、著者の方法の検討と、著者の方法と Hiester-Vermeulen(1), Ogata-Banks(2) の理論とを比較した。ついで、放射性廃水の地下処理によく使用される一つの井戸から廃水を注入し、近くの井戸から同量の地下水を汲み出す二井系につき、室内模型実験と野外実測とを試みて、同様に著者の方法の実用性を検討した。

### 3-2 イオン交換塔による実験

ガラス円筒に Green Sand を詰め、放射性追跡子として  $^{90}\text{Sr}$ 、また水の追跡子として三重水素水を用いて、その各々の溶出曲線を求め、三重水素水の溶出曲線から  $^{90}\text{Sr}$  の溶出曲線を予測できるかどうかを試した。Green Sand を用いたのは、このゼオライトは水理学的な性質が砂とよく似ているが、交換容量が  $10\sim 50\text{ meq}/100\text{ g}$  と高く、従って、 $K_f$  値が大きくて、三重水素水と  $^{90}\text{Sr}$  の溶出曲線がよく分離されるため、理論を検討する上に都合がよいからである。

#### 3-2-1 実験装置

使用した実験装置を図-3・1に示す。①は  $\text{CO}_2$  trap で、 $\text{NaOH}$  を軽石に附着させて乾燥したものであり、 $\text{CO}_2$  を除去する。②は  $20\ell$  原液貯留槽で、この中で  $^{90}\text{Sr}$  の原液を調整する。③は定流量ポンプで、Sigma Motor 製を使用した。ろ過を行なうとき負圧が生ずると、水中に溶存した空気が気泡を作り、ろ層内の透水を悪くするから、④の air trap で一時的に負圧を与えて、⑤の砂層内に気泡が発生するのを防ぐ。ろ過に先立ち炭酸ガスを砂層に吹き込み、空気を排出してから原液を導入し、砂層中に空気が残らないようにするが、このために⑥の T 字管を使用している。長時間無人で運転するために、三方ロックより、T 字管と Screw clamp を用いた方が原液が漏れる心配がなくて良い。流出液は fraction collector で採水する。⑧の円筒は直径  $2.5\text{ cm}$ 、長さ  $61\text{ cm}$  のガラス管を使用した。

$\text{Sr}$  は  $\text{Ca}$  と共にアルカリ土族に属するから、 $\text{Ca}$  が  $\text{CaCO}_3$  として沈殿すると、 $\text{Sr}$  も  $\text{SrCO}_3$  として共沈する。ところで  $\text{Ca}$  は  $\text{CO}_2$  と

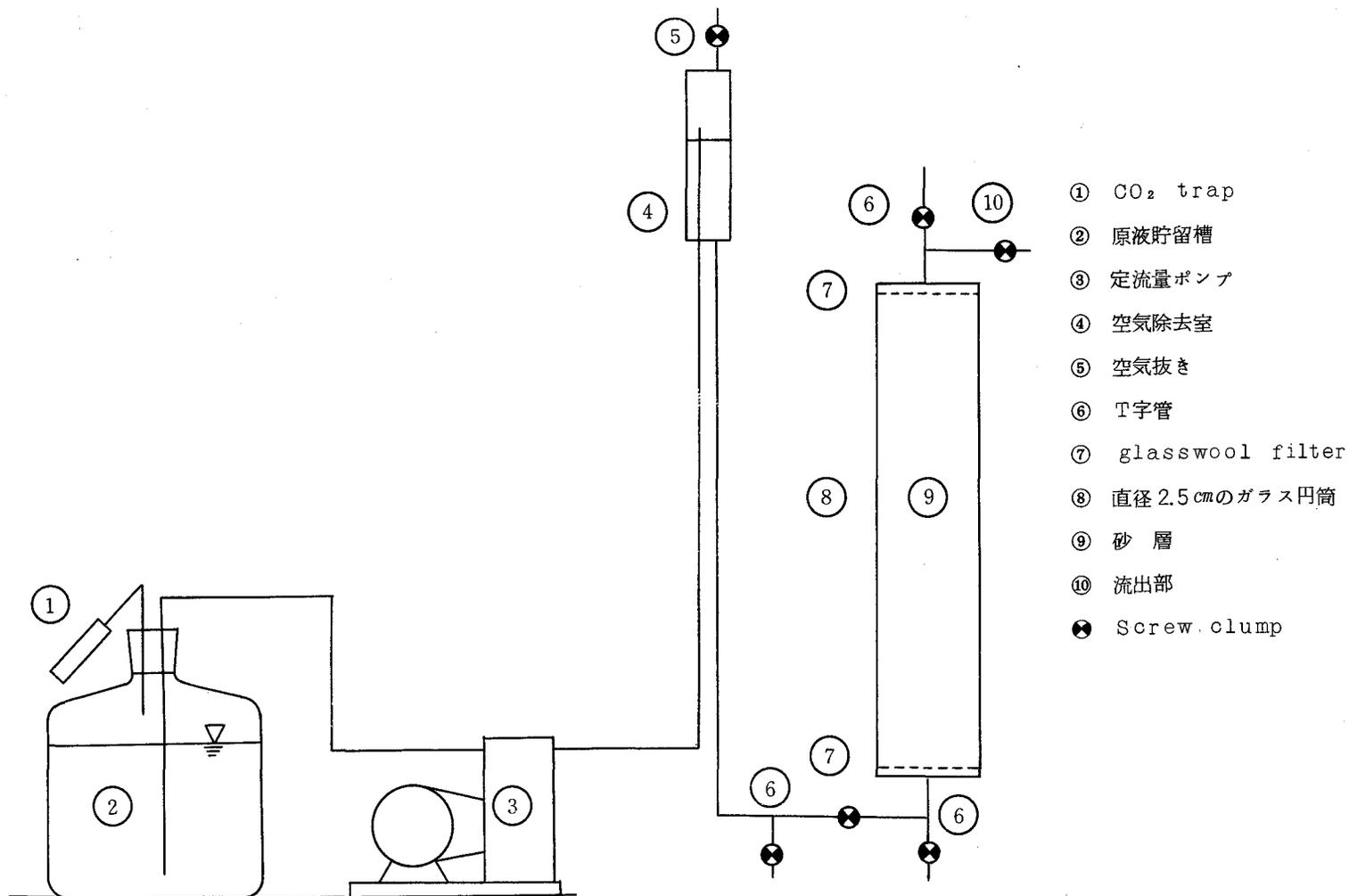


図 - 3 . 1 カ ラ ム 実 験 装 置



なる平衡を保つときは

$$(Ca^{++}) \cdot (CO_3^{--}) = 4.82 \times 10^{-9} = K_S \quad (3-2)$$

(25°C)

なる関係が成立する。ここに( )はモル濃度を示す。しかし、 $CaCO_3$ は過飽和であっても沈殿しないことがある。このときは何らかの刺激、たとえば $CaCO_3$ 沈殿物の植種とか、ろ過をしてやれば平衡状態になるまで沈殿が起る。 $^{90}Sr$ を含む過飽和の $CaCO_3$ 液をカラムに通すと、 $^{90}Sr$ が $CaCO_3$ と共にカラム中に沈殿して、カラムのイオン交換容量以上に除去される。逆に $Ca$ が平衡濃度より低いと砂層にある石灰成分を溶出させるから、実験結果の解釈が困難になる。そこでカラムに通す水は、(3-2)の平衡に達している必要がある。(3-2)の平衡は $Ca$ 濃度、 $pH$ 、アルカリ度で定まる。重炭酸イオンは



$$\frac{(H^+)(CO_3^{--})}{(HCO_3^-)} = 4.69 \times 10^{-11} = K_2 \quad (3-4)$$

(25°C)

なる平衡を示すし、水は



$$(H^+)(OH^-) = 10^{-14} = K_W \quad (3-6)$$

のように解離する。またアルカリ度を(A)で示すと、 $(CO_3^{--})$ 、 $(HCO_3^-)$ 、 $(OH^-)$ を中和するに要した $(H^+)$ の量がアルカリ度だから

$$(A) + (H^+) = 2(CO_3^{--}) + (HCO_3^-) + (OH^-) \quad (3-7)$$

ただし、 $(CO_3^{--})$ の前に2がつくのは、炭酸イオンが2価だからである。(3-2)と(3-4)より

$$\frac{(Ca)(HCO_3^-)}{(H^+)} = \frac{K_S}{K_2} \quad (3-8)$$

(3-7)より(3-4)を用いて $(HCO_3^-)$ を計算すれば

$$(\text{HCO}_3^-) = \frac{(\text{A}) + (\text{H}^+) - \frac{K_w}{(\text{H}^+)}}{1 + \frac{2K_2}{(\text{H}^+)}} \quad (3-9)$$

(3-2) で与えられる飽和の pH を  $\text{pH}_s$  と書くと, (3-8), (3-9) より

$$\begin{aligned} \text{pH}_s = & \log \frac{K_s}{K_2} - \log (\text{Ca}^{++}) \\ & - \log \left\{ \frac{(\text{A}) + (\text{H}^+) - \frac{K_w}{(\text{H}^+)}}{1 + \frac{2K_2}{(\text{H}^+)}} \right\} \end{aligned} \quad (3-10)$$

ところで,  $\text{pH} = 5.5 \sim 9.5$  にあつては

$$1 + \frac{2K_2}{(\text{H}^+)} \doteq 1 \quad (3-11)$$

$$(\text{A}) + (\text{H}) - \frac{K_w}{(\text{H}^+)} \doteq (\text{A}) \quad (3-12)$$

と置いて良いから

$$\begin{aligned} \text{pH}_s = & \log \frac{K_s}{K_2} - \log (\text{Ca}^{++}) - \log (\text{A}) \\ = & 8.313 - \log (\text{Ca}^{++}) - \log (\text{A}) \end{aligned} \quad (3-13)$$

となる。実験に際しては常に  $\text{pH}_s$  を計算して, 原液の pH を  $\text{pH}_s$  に調節した。原液貯留槽に  $\text{CO}_2$  trap をつけたのも空気中の  $\text{CO}_2$  が入ってこの平衡関係をくずすことを防いだものである。

交換材料として使用した Green Sand は, 有効径  $0.33 \text{ mm}$ , 均等係数 1.67 のもので, 実験条件を統一する意味で 20~50 mesh のものを用いた。この大きさの砂は, 重量比で全体の 91% を占める。Green Sand の粒度分布を表-3.1 に示す。

3-2-2 実験方法      実験には  $1.2 \times 10^{-2} \text{ N}$  の  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  と,  $1.2 \times 10^{-4} \text{ N}$  の  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$  を含む中性の液を用いた。この液は (3-13) 式で得られる  $\text{pH}_s$  より  $\text{pH}$  が低く,  $\text{CaCO}_3$  に関して未飽和の状態にある。ところで試料砂を 0.1 N の塩酸で洗って, アルカリ土金属の溶出を検査したが, Ca も Mg も溶出しなかった。これは砂の中に  $\text{CaCO}_3$  などの可溶性物質が存在しないことを示しているから,  $\text{CaCO}_3$  に関し未飽和の液を流しても実験中に Ca 濃度が変化する恐れはない。

Stock solution として, 1 N より少し高い濃度の  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  液を作成し,  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  で

pH を 10 に調節すると、 $\text{CaCO}_3$  が沈殿する。この液をいったんろ過し、ろ液の濃度を注意深く 1 N に調節し、これに  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$  を 0.0 1 N になるように加えた。これで 1 N の  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$  と、0.0 1 N の  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$  を含む pH 10 の原液ができる。これを 83.3 倍に硝酸で pH を 7 に調整して使用する。いずれの液も、 $\text{CaCO}_3$

表-3.1 Greensand の粒度分布

フルイ		残存する重量 (%)	累積通過重量 (%)
mesh	mm		
16	1.19	0.161	0.16
20	0.84	3.11	3.27
30	0.59	23.79	27.06
50	0.30	67.64	94.69
70	0.21	4.91	99.59
100	0.15	0.18	99.77

に關し未飽和なので、空気中の  $\text{CO}_2$  を吸収して  $\text{CaCO}_3$  の沈殿を作る恐れがあるから、 $\text{NaOH}$  によって原液貯留槽の空気中の  $\text{CO}_2$  を除去した。Green sand は一度に詰めると砂が不均一になり、断面を液が一様に流れないので、少しずつカラムの壁をたたきながら詰めた。これにすぐ溶液を入れるとカラム中に気泡が残るので、あらかじめ  $\text{CO}_2$  ガスを通して空けき中の空気を排除し、それから液を通した。この場合  $\text{CO}_2$  は流入する液にすべて吸収溶解し消失するからカラム中に気泡は残らない。実験に先立ちカラムを 1 N の中性硝酸カルシウム溶液で飽和させ、さらに間けき水中の高濃度 Ca を 0.012 N 中性硝酸カルシウムで洗浄して Green sand を Ca 型とした。

理論の仮定にできるだけ近い条件で実験するには、砂層のすぐ下面から一定の濃度の  $^{90}\text{Sr}$  と三重水素水を含む水を通水すべきで、実験系統の中にカラム以外の、たとえば導管中の空けきがあったとすると、カラムに原液が入るまでに導管の中で拡散が起り、実験結果を理論的に正確に解析できなくなる。そこで、結合導管はできる限り短かくし、カラムの出入口に T 字管をつけてカラム直下から液を入れることにした。なお、砂層中と導管中の空けきの容積は、三重水素水を用いたトレーサー実験で求めた。実験の方法は、カラム直下の Screw clamp を閉じ、T 字管の下の clamp をあけて、カラムに通じる管内に原液を通して洗浄する。つぎに T 字管の下の clamp をしめ、カラムへ向う clamp をあけると原液はカラムの中に入る。砂層より下のガラス管と T 字管の一分岐中に存在する空けきの量は約 1.5  $\text{cm}^3$  である。原液は 20  $\ell$  の 0.0 12 N 硝酸カルシウム、0.00012N 硝酸ストロンチウム溶液に 3  $\mu\text{Ci}$  の  $^{90}\text{Sr}$  を加えてよくかくはんし、さらにその 2  $\ell$  を取りわけて、これに 10  $\mu\text{Ci}$  の三重水素水を加えた。まず、2  $\ell$  の三重水素水と  $^{90}\text{Sr}$  を含む水を上記の方法で通水してから、残りの  $^{90}\text{Sr}$  のみを含む水を通水し、流出水の  $^{90}\text{Sr}$  と HTO を実測した。

放射能の測定方法は  $^{90}\text{Sr}$  は試水 10  $\text{ml}$  をピペットで直径 4.5  $\text{cm}$ 、深さ 0.6  $\text{cm}$  のアルミニウム製試験皿にとり、赤外線ランプで蒸発乾固した後、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{90}\text{Y}$  の放射平衡を得るために少くとも 14 日間貯蔵し、測定前に再び赤外線ランプで乾燥させデシケーターに放冷後、Nuclear Chicago Model 186 Gasflow Counter でメタンガスを用いて  $\beta$  線測定をした。

なお、メタンガス中の水蒸気を取るために測定ヘッドに入れる前にメタンガスは乾燥シリカゲル層を通した。

$C_a$  と  $S_r$  による自己吸収をさけるために原液の放射能をいつも比較測定に用いた。

三重水素は低エネルギー  $\beta$  線を放出するので、3 mℓ の試水と 15 mℓ の液体シンチレーターを 20 mℓ 容量の Crystal-Lite 容器に入れ、Packard Tricarb Liquid Scintillation Spectrometer で測定した。液体 Scintillator は dioxane に溶解した 2,5 diphenyloxazole (pp0) と ナフタリンである。実験条件を表-3・2 に示すが、実験は 3 回実施し、流速を 6.7 ; 18.7 ; 37.0 mℓ / min に変化させた。

表 - 3・2 実験条件

実験番号	カラムの砂			砂床の長さ (cm)	流 量		空 げ き (mℓ)
	重 量 (g)	比 重 (g/cm <sup>3</sup> )	空 げ き 率 (%)		流 量 (mℓ/min)	流 速 (cm/min)	
1	438.7	2.53	47.4	59.7	6.0	1.21	156.0
2	441.0	2.53	40.8	59.9	18.7	3.79	142.0
3	438.7	2.53	41.1	59.7	37.0	7.48	156.0

各実験ごとに別のカラムを作った。

### 3-2-3 実験結果と考察

(1)分散 (Dispersion) まずカラムの空げきを測定する。乾いた砂を詰めた状態のカラムと、実験終了後カラムの空げきを水で詰めた状態とで重量を測定すると、その差から全空げきの体積がわかる。

また、三重水素水の溶出曲線から

$$V_0 = V_1 - \int_0^{V_1} \frac{C}{C_0} dV \quad (3-14)$$

によって計算することもできる。

ここに  $V_0$  = 空げきの体積

$V_1$  = 溶出曲線が飽和を示した ( $C/C_0 = 1$  となった) 容積

$C/C_0$  = 標準化した流出水濃度 (= 流出水濃度 / 原水濃度)

である。結果を表-3・3 に示す。

直接測定よりも、溶出曲線から求めた体積の方が 9~33 mℓ 多いが、これは三重水素水が緑砂の吸着水と置きかわるからであるといわれている。

Lau (3) は、三重水素水の拡散曲線として

表 - 3.3 カラムの空けき水容量の比較

実験番号*	H <sub>2</sub> O溶出曲線より(ml)	直接測定より(ml)	差(ml)
1	165	156	9
2	156	142	14
3	189	156	33

\* 異ったカラムについての実験

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} \left[ 1 - \operatorname{erf} \frac{1 - \left( \frac{V}{V_0} \right)}{2 \sqrt{\left( \frac{D_m}{L} \right) \left( \frac{V}{V_0} \right)}} \right] \quad (3-15)$$

を与えている。

ここに  $V$  = 流出量

$V_0$  = カラムの空けき体積 (ml)

$D_m$  = 標準拡散係数 (cm)

$L$  = カラムの長さ (cm)

である。(3-15)は第2章(2-41)式を流出量に関して書き直したものである。この式を対数確率紙上に示すと、 $C/C_0 = 0.5$ ,  $V = V_0$  を通る直線になる。表-3.3に示す種の流速変化に対して、これを対数正規紙上に図-3.2, 図-3.3, 図-3.4のようにplotしてみると $C/C_0$ の大きいところで $V/V_0$ が理論より大きく出る傾向がある。これはつぎの三つの原因が考えられる。

1. 拡散係数 $D$ , あるいは $D_m$ を定数とした仮定があやまっている。
2. 拡散現象には、砂層内における拡散ばかりでなく、連結管内の拡散が加わっている。
3. 前述のように、もし表-3.2の2つの方法による間けき容積の測定が緑砂に吸着した水と三重水素水との交換によるものとすれば、現象は(3-15)で示される水の拡散ではなく、(2-42)で示した水と三重水素水の交換になる。

ここでは以上三つの原因が単独で起っているものか、あるいは2つ以上複合して起っているものか明確ではない。

Lau等(3)は、多孔体内の拡散係数 $D$ として、

$$D = D_m \cdot \bar{v}_x \quad (3-16)$$

を与えている。

ここに  $\bar{v}_x$  = 間けき平均速度である。

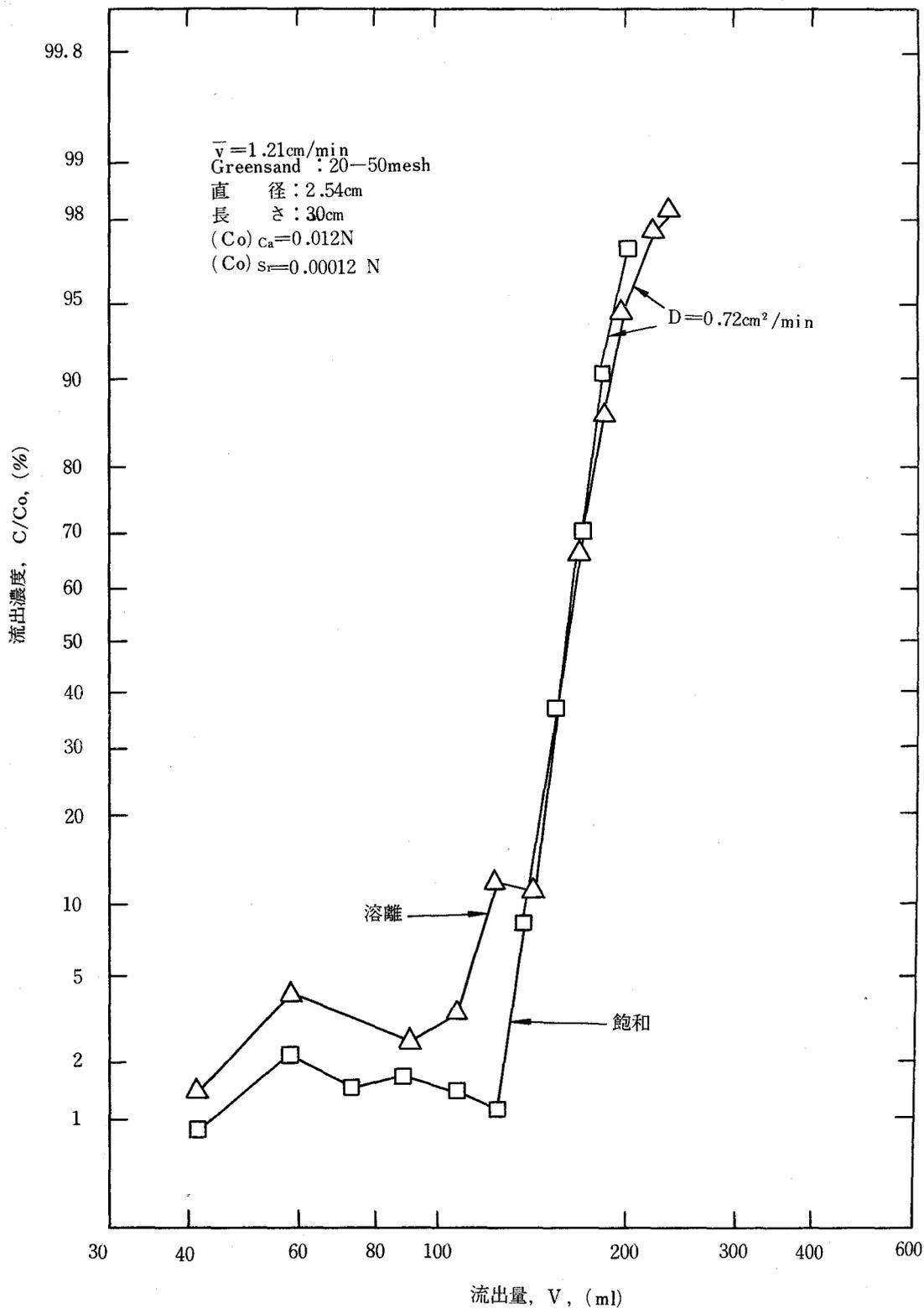


図-3・2 カラムにおける三重水素水溶出曲線 (実験-1)

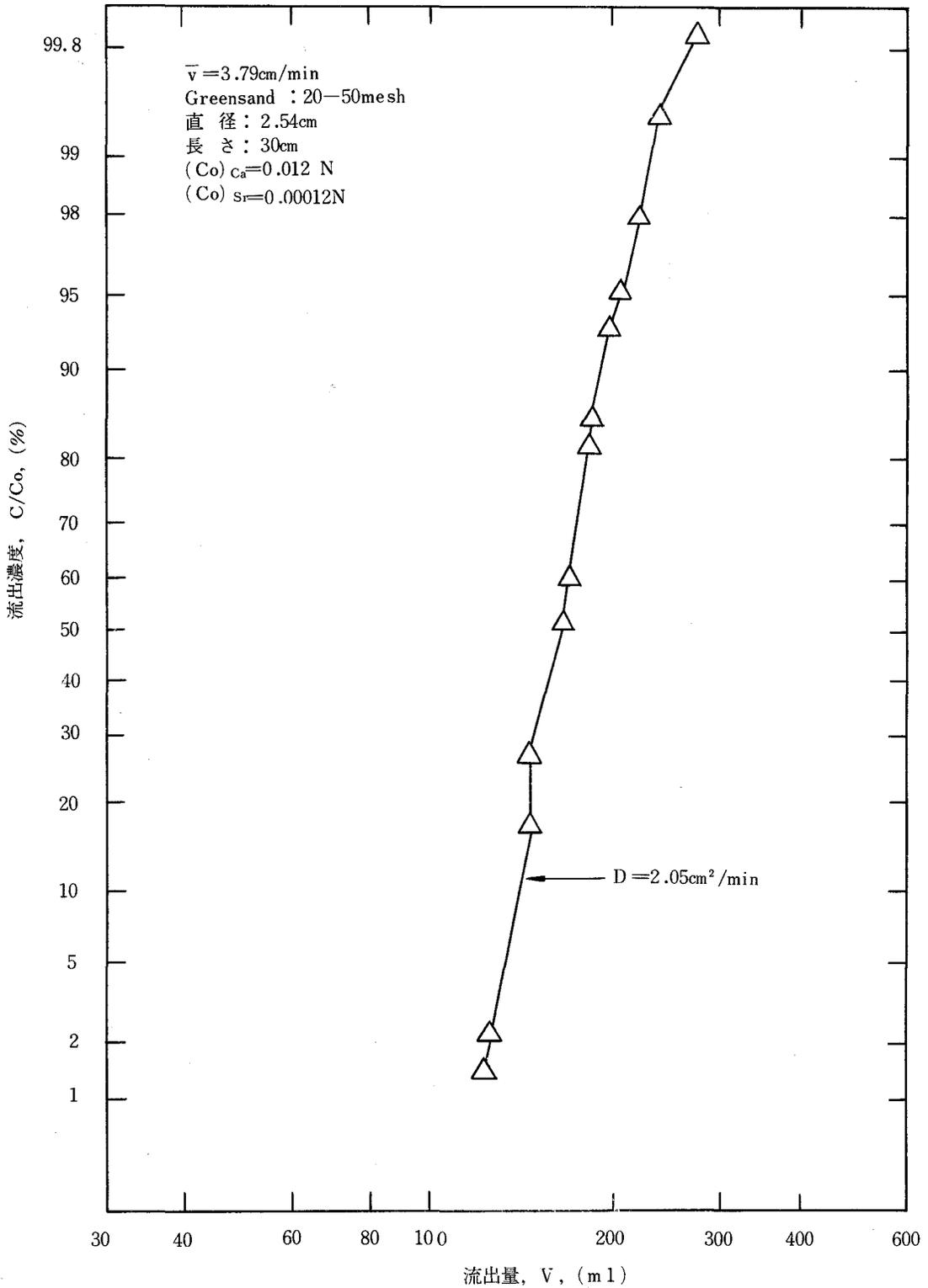


図-3・3 カラムにおける三重水素水溶出曲線 (実験-2)

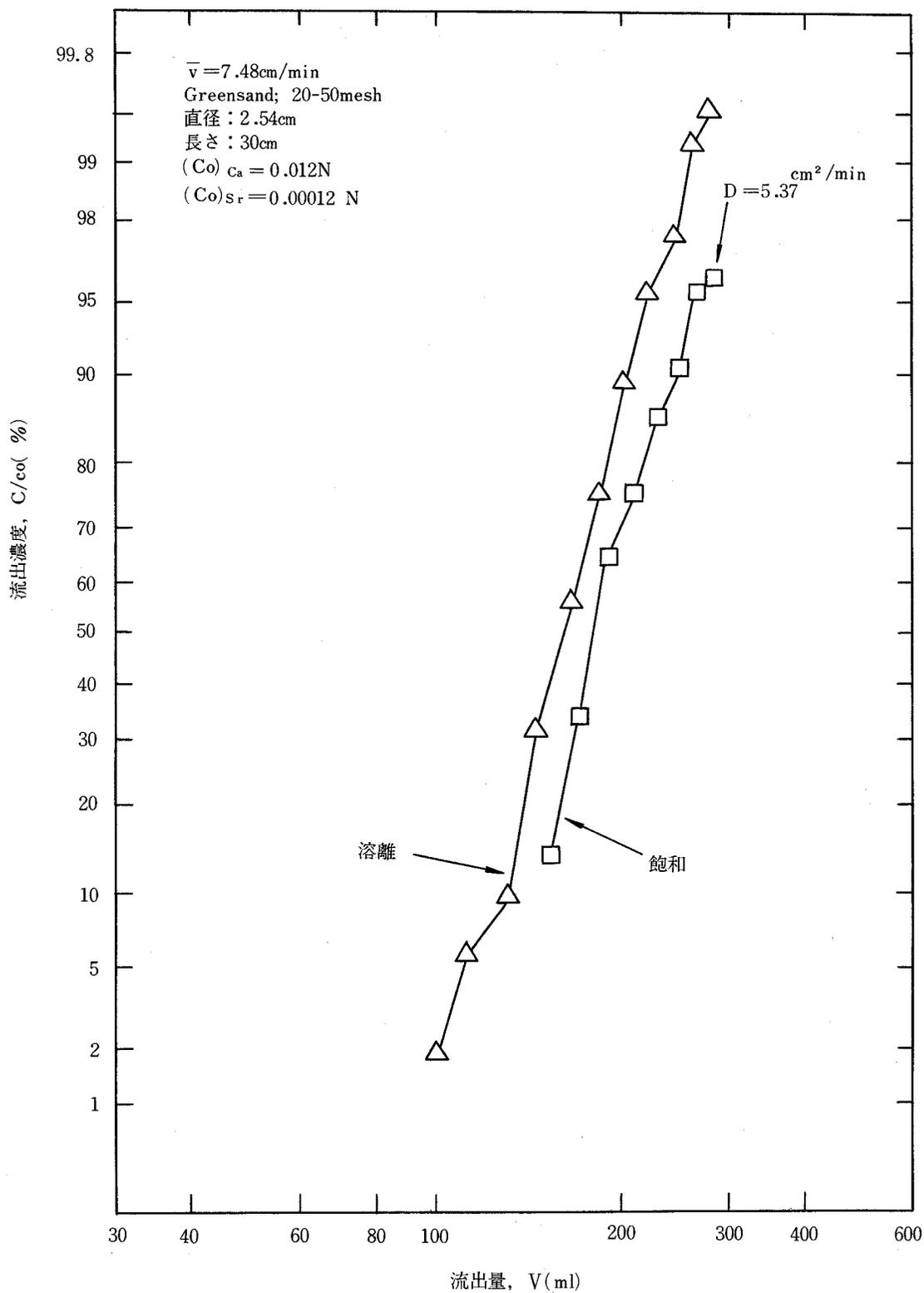


図-3.4 カラムにおける三重水素水溶出曲線 (実験-3)

図-3・2, 図-3・3, 図-3・4より得たDと,  $\bar{v}_x$ は表-3・4のようになり, この関係をplotすると図-3・5のように

なる。これから直ちに(3-16)式が成立するとはいえないが, Dの $\bar{v}_x$ に対する線型依存性を示している。この場合,  $D_m$ の値(媒体の拡散係数)は0.71cmであった。

表-3・4 拡散係数Dと流速 $\bar{v}_x$ の比較

実験番号	D ( $cm^2/min$ )	$\bar{v}_x$ (cm/min)
1	0.72	1.21
2	2.05	3.79
3	5.37	7.48

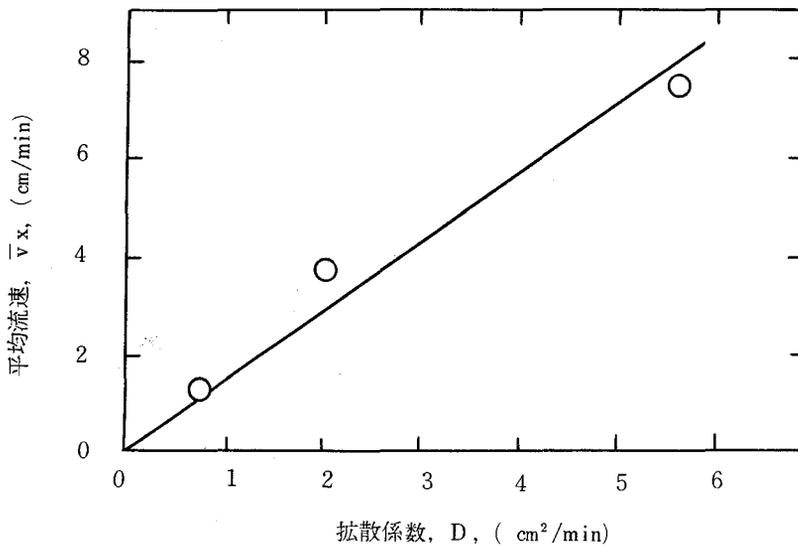


図-3・5 拡散係数と流速の関係

(2)土の交換容量 著者の理論を検討するには, まず土の交換容量, 質量作用定数を知っておく必要がある。Green sandの交換容量は, 酢酸アンモニウム法と, 硝酸カルシウム法を用いて測定した。人工的なイオン交換樹脂と異なり, 天然鉱物の交換容量は測定前に飽和させておいたイオンの型(たとえば, Na型, 水素型), 交換に使用するイオン, pH, 温度などによって変化し, 絶対的な交換容量が存在しないのが常である。このため, できる限り実験条件に近い状態で交換容量を求める必要がある。一方, 農芸化学の面で土の肥料吸収量と関連して測定されてきた酢酸アンモニウム法を無視することはできない。そこで, 表-3・5に示すように酢酸アンモニウム法(batch式)で温度100°Cと21°Cでアンモニウムイオンを試料砂に飽和させた場合, 同じく温度100°Cと21°Cでbatch法によりCaイオンを飽和させた場合, および21°Cでカラムを用いてCaイ

表-3.5

Green sand の 交換 容 量

実 験 条 件			交 換 容 量 (meq/100g)		
飽 和 溶 液 <sup>*1</sup>	温 度 (°C)	方 法	1 回 目	2 回 目	3 回 目
NH <sub>4</sub> C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> O <sub>2</sub>	100	batch 法	26.3 (min) <sup>*2</sup>	27.7 (max)	27.0
NH <sub>4</sub> C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> O <sub>2</sub>	21	batch 法	15.6	15.7	15.7
Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	100	batch 法	17.9	18.0	17.9
Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	21	batch 法	16.8	16.9	16.9
Ca(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	21	Column 法	17.4	17.5	17.4

\* 1 ; 溶液は全て 1N で中性

\* 2 ; 6 回測定した

オンで飽和させた場合の5つの方法によって交換容量を測定した。

Green sand はあらかじめ 1N の Ca(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> で飽和させ、ついでメチルアルコールで洗浄液に AgNO<sub>3</sub> を滴下しても白沈を生じなくなるまで洗い、Ca 型としてから使用した。酢酸アンモニウム法は、試料砂 10g に中性の 1N 酢酸アンモニウムを加えて 100°C で 2 時間煮沸し、メチルアルコールで洗滌してから Kjeldahl 法で煮沸して蒸留されるアンモニアを定量する。定量法を付録-2 に示す。同一の緑砂から 6 個の Sample を抜き出し、測定したところ交換容量は 27.0 ± 0.5 meq/100g であった。この方法は 100°C でアンモニウムイオンを交換吸着させるのであるが、室温 (21°C) で同様に交換させると、15.7 meq/100g と減少した。一方、カラム実験には Ca(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> を飽和させる液として使用するので、同じ液を用いて batch 法で 100°C に熱して交換させると 17.9 meq/100g、常温で交換させると 16.9 meq/100g となった。カラム法で常温で飽和させるとこれが 17.4 meq/100g になる。いずれの場合にも緑砂から 2 回試料砂を採取して、同一条件で測定を行い、結果を比較しているが両者の間にはほとんど差が認められない。バッチ式実験では試料砂と陽イオンとをいずれも 2 時間接触させた。

Hilgard(4)は、土の交換容量は温度が高いと増加すると報告し、Lyon(5)は温度が上がると減少するとし、Kelly(6)は土の交換容量は温度にほとんど影響されないと述べている。ここでは表-3.6 に示すように、温度が上がると容量は増加している。表-3.2 で示した実験では Ca(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 液を常温でカラムに通水するので、交換容量としてカラム法によって得られた 17.4 meq/100g を使用することにする。

Mass action constant は batch 法で測定した。10g の緑砂の試料を、1N の硝酸カルシウムと 0.01N の硝酸ストロンチウムを含む中性液で前処理した後、これを 0.012N の硝酸カルシウムと 0.00012N の硝酸ストロンチウムを含む液で洗い、洗滌液をろ過して取り除いた後 <sup>90</sup>Sr と 0.012N 硝酸カルシウム、0.00012N 硝酸ストロンチウムを含む中性液 50 ml を加え、2 時

間ゆるやかに攪拌し、上澄水中の $^{90}\text{Sr}$ 濃度を知って $K_{\text{Sr}-\text{Ca}}$   
 $-\text{Ca}$ を求めた。結果は表-3・6に示す通りであり、  
 平均値は $1.33\text{g}/\text{m}\ell$ である。この値は、Orcutt,  
 Kaufman, Klein(7)が粘土について報告した  
 1.0~1.65の値の範囲に入っている。

緑砂の比重はピクノメーターを用いて測定し、 $2.53\text{g}/\text{cm}^3$   
 であることを知った。カラムの空けき率はカラム  
 の体積とカラムに詰めた砂の質量から、計算により表-  
 3・2のように求めた。

(3) $^{90}\text{Sr}$ の溶出  $^{90}\text{Sr}$ の溶出曲線を図-3・6, 3・7, 3・8に示す。この曲線は著者の理論に  
 よれば

$$K_f = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \quad (3-17)$$

を知ることによって、図-3・2, 3・3, 3・4から推定できるはずである。流量 $18.7\text{m}\ell/\text{min}$   
 の場合について、この値を計算してみると、

$$\text{空 け き 率} \quad f = 0.408$$

$$\text{比 重} \quad \rho = 2.53\text{g}/\text{m}\ell$$

$$\text{分 配 係 数} \quad k_d = \frac{q_{\text{Sr}}}{C_{\text{Sr}}} = K_{\text{Sr}-\text{Ca}} \cdot \frac{q_{\infty}}{C_{\text{Ca}}}$$

$$\text{交 換 容 量} \quad q_{\infty} = 0.174\text{meq}/\text{g}$$

$$\text{溶 液 中 } C_{\text{Ca}} \text{ 濃 度} \quad C_{\text{Ca}} = 0.012\text{meq}/\text{m}\ell$$

$$\text{質 量 作 用 係 数} \quad K_{\text{Sr}-\text{Ca}} = 1.33$$

したがって

$$K_f = 1 + \frac{1 - (0.408)}{(0.408)} (2.53) (1.33) \frac{(0.174)}{(0.012)} = 7.22 \quad (3-18)$$

流量 $6.0\text{m}\ell/\text{min}$ のときは $K_f = 5.28$ 、流量 $37.0\text{m}\ell/\text{min}$ のときは $K_f = 69.1$ である。  
 これを用いて $^{90}\text{Sr}$ の溶出予測値を計算し、図-3・6, 図-3・7, 図-3・8に示す。流速の遅い  
 ときには予測値と実測値は合うが、流速が早くなると図-3・7, 図-3・8のように $C/C_0$ が0.5  
 をこえる部分で予測値ははずれる傾向が出る。これは恐らく理論で無視した交換速度に起因するものと  
 思われる。

式(2-42)によれば、 $^{90}\text{Sr}$ も対数確率紙上で直線になるべきであるが、実際には三重水素水の

表-3・6  
 質量作用定数( $K_{\text{Sr}-\text{Ca}}$ )

サンプル	質量作用定数
1	1.35
2	1.28
3	1.33
4	1.34
平均	1.33

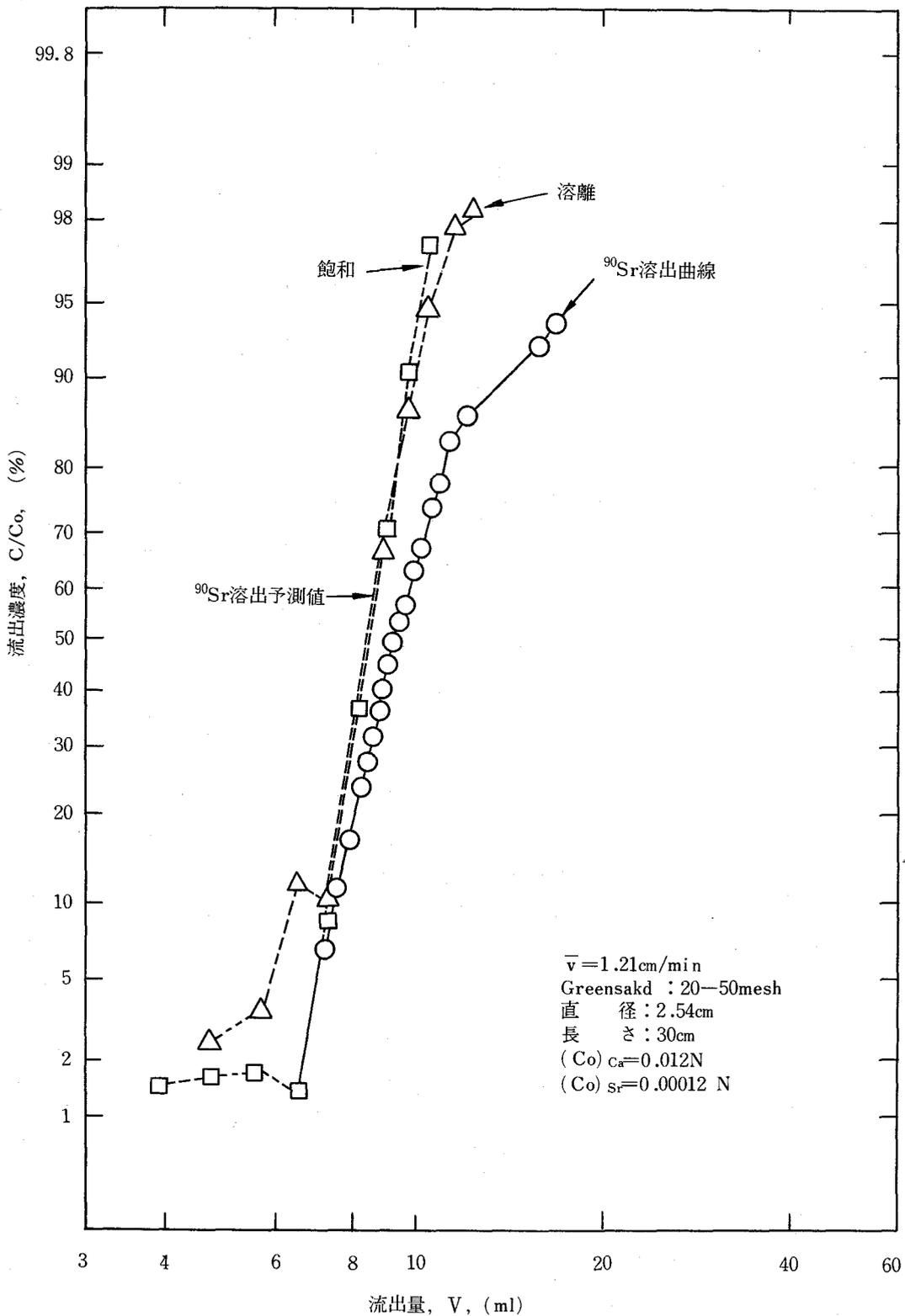


図-3・6 カラムにおける  $^{90}\text{Sr}$  の溶出曲線とその予測 (実験-1)

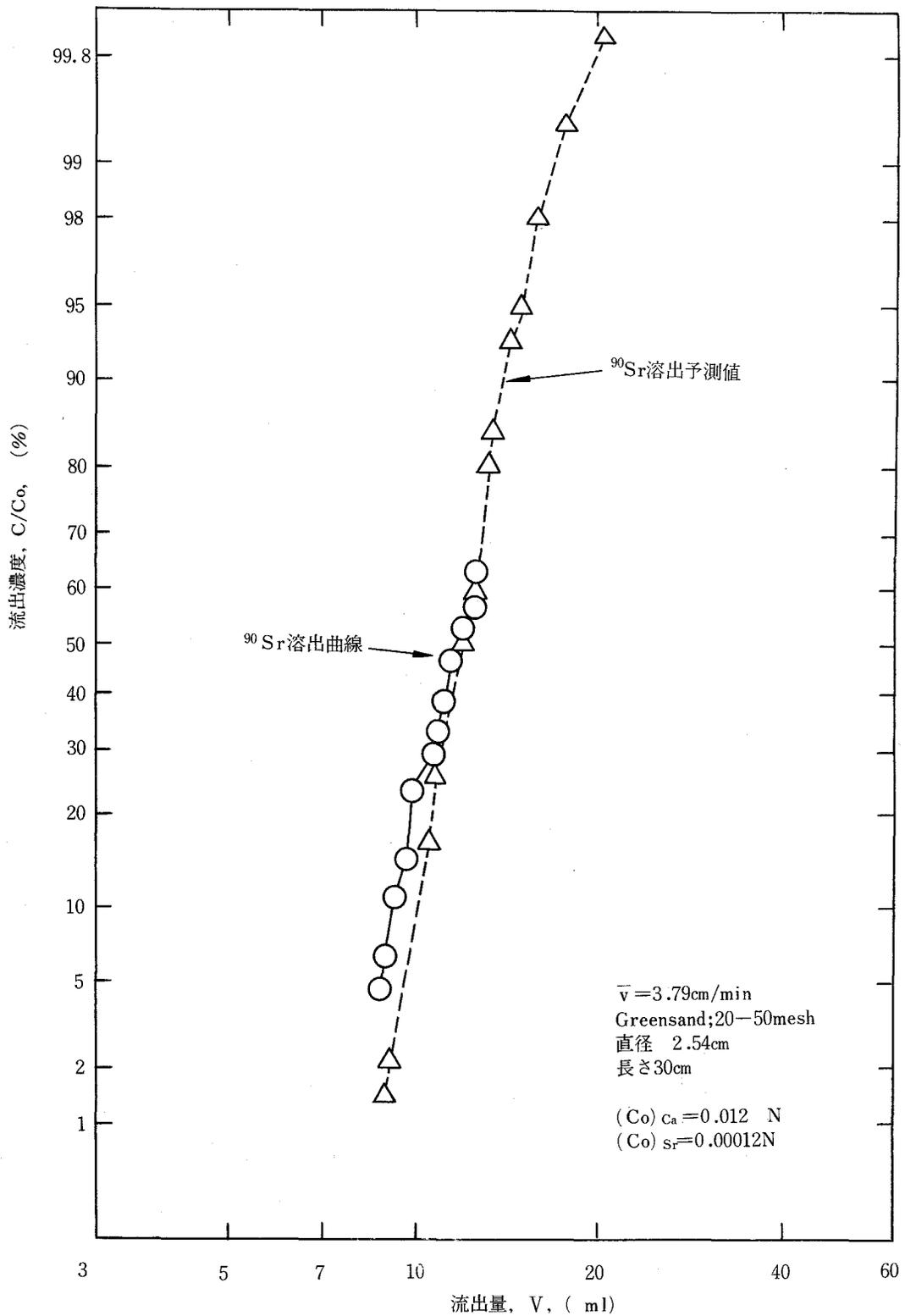


図-3.7 カラムにおける $^{90}\text{Sr}$ の溶出曲線とその予測 (実験-2)

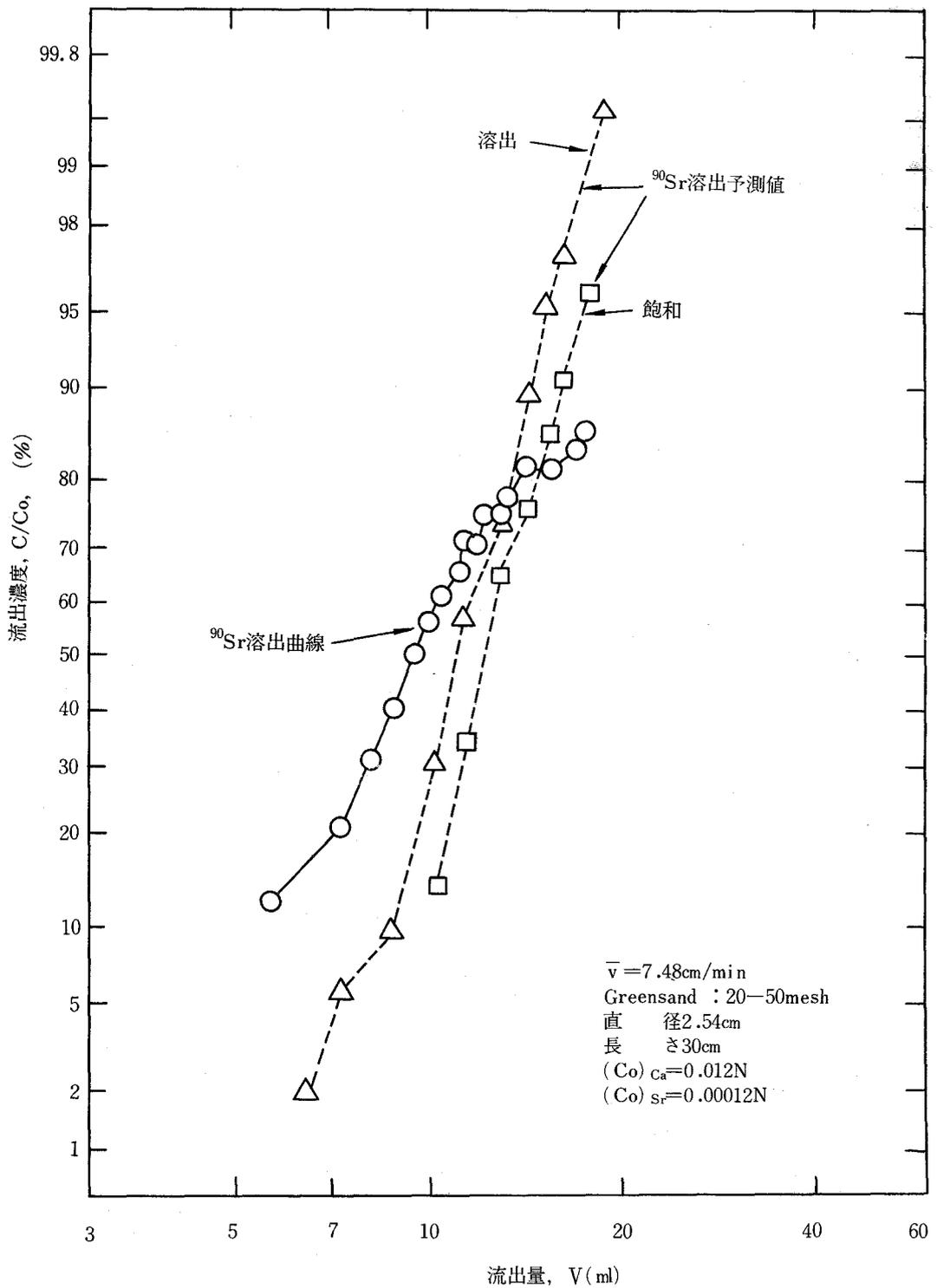


図-3.8 カラムにおける $^{90}\text{Sr}$ の溶出曲線とその予測 (実験-3)

場合ほどこの傾向を示さない。これもやはり交換速度を無視したためと思われる。

Hiester-Vermeulen(1)は交換の律速因子を考え、細孔内の拡散を無視している。これに対し、著者は律速因子を無視して拡散を考慮に入れているから、流速が早く交換平衡の得られない場合は、Hiester-Vermeulenの理論の方が精度が良く、逆に低流速のときは著者の理論がよく適合すると考えてよい。三つの実験のうち流速最大のものについて、Hiester-Vermeulenの理論、著者の予測値を $^{90}\text{Sr}$ 溶出の実測値とともに示したのが図-3・9である。Hiester-Vermeulenの理論および著者の予測共に $C/C_0$ が0.7より大きいとき、 $^{90}\text{Sr}$ 溶出実測値が対数正規確率紙上で直線とならず、上に凸に曲ることを説明できない。

したがって、Hiester-Vermeulenの理論も、著者の理論も現象を説明する力はほぼ互格と考えられるが、交換容量と拡散係数は比較的容易に求まるのに対し、交換速度はきわめて測定しにくいものであるから、著者の方法の方が実用上は優るものと思われる。

Ogata-Banksの式は $m$ と $q$ の二つの未知数を含み、これを交換速度の測定から求めねばならぬが、交換速度は実測がきわめて困難なので理論解を計算するには至らなかった。

### 3-3 二井系モデルによる実験

二井系は一つの井戸から放射性廃水を地下に注入し、他の井戸から同量の地下水を汲み出すことによって、地下水位のbalanceを保たせ、また注入井戸から地下に入れた放射性核種をできる限り汲出井に引いて、予想せぬ方向に放射性物質が移行するのを防ごうとするものであり、放射性廃水の地下処理の基本をなすものである。前節で行った一方向の流水に関する実験を、さらに複雑な場合に拡張するとともに、次節で行う野外実験に対し、基本的な資料を得るのが本節の目的である。

#### 3-3-1 実験装置

二井系の流線を示す流れ関数 $\Phi$ は

$$\Phi = \frac{Q}{4\pi Bf} \ln \frac{y^2 + (x-a)^2}{y^2 + (x+a)^2} \quad (3-19)$$

で示され、等ポテンシャル線は、ポテンシャル関数

$$\Psi = \frac{Q}{2\pi Bf} \left[ \tan^{-1} \frac{a-x}{y} - \tan^{-1} \frac{a+x}{y} \right] \quad (3-20)$$

で示される(7)。ここに

$Q$  = 揚水の流量

$B$  = 地層の厚さ

$a$  = 揚水井と注入井の距離

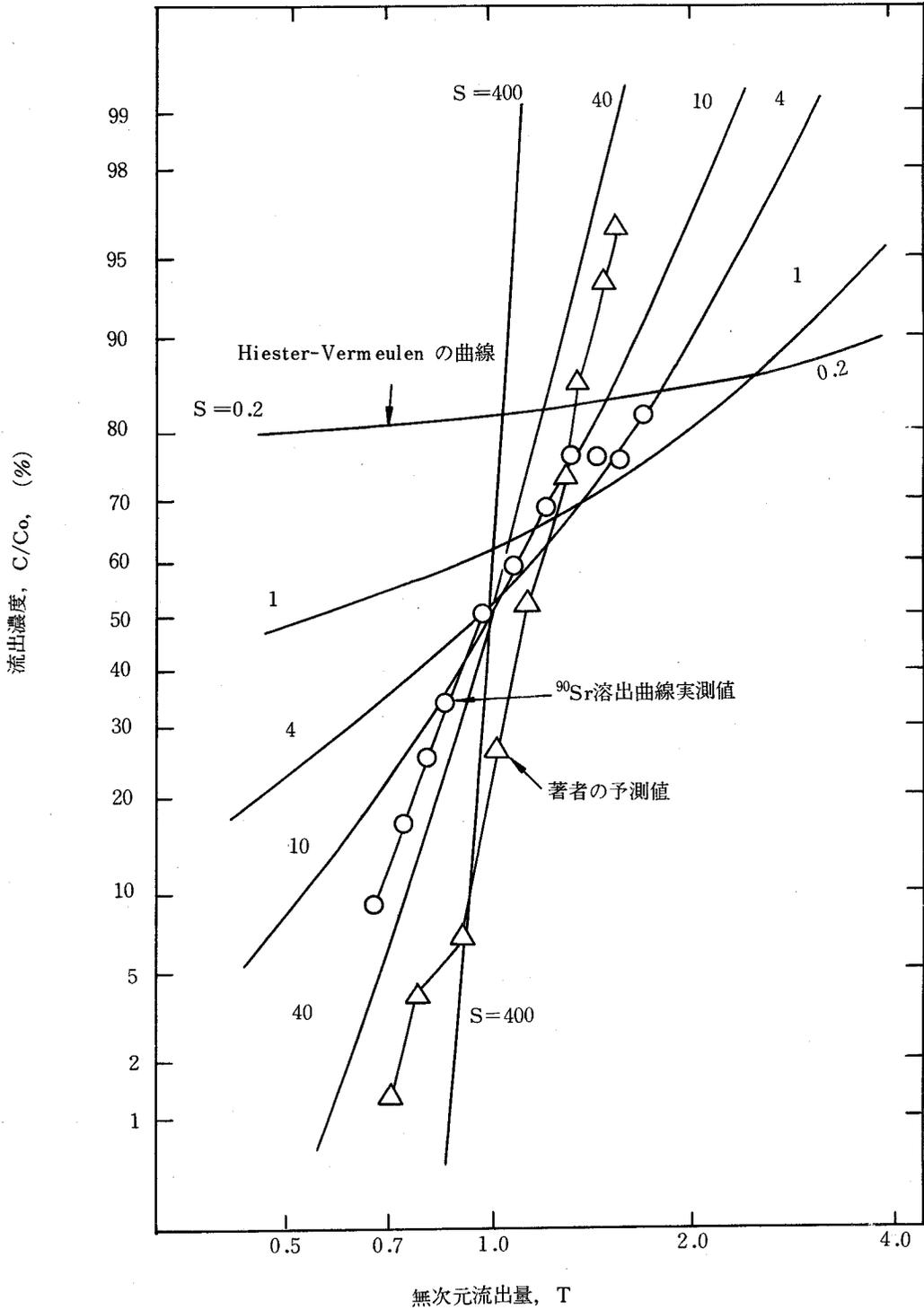


図-3.9 カラムにおけるHiester-Vermeulenの理論と著者の方法の比較

この場合の流線を図-3・10に示した。実線は流線を表わし、破線は等ポテンシャル線を示す。流線は揚水井と注入井を結ぶ線分の垂直二等分線上に中心を有する円群であり、等ポテンシャル線は、二井間を結ぶ直線上に中心を有する円である。実存する地層に相似の模型を作るには、無限の拡がりを持つ媒体を必要とするが、これはとても製作できないので、二井間を結ぶ線分を直径とする円で近似した。この円内を流れる水量は無限に拡がる媒体を流れる場合の1/2であり、かつ揚水井への放射性物質の溶出曲線の初期の部分、この円内を通過して溶出したものである。

模型は直径90cm、厚さ10cmの円板状で6mmの鋼板を溶接して製作し、上部に砂を入れるふたをつけ、また前面の半分はプラスチック窓を作って模型内の水の流れが見えるようにした。流入管、流出管ともに $\phi 12.5$ mm真ちゅう管を用い、理論の条件に合致するように、できる限り模型の壁につけて設置し、また二井を結ぶ中間に二本のSampling管をつけた。模型を3.8cm×3.8cmのL型鋼で締めて、水圧

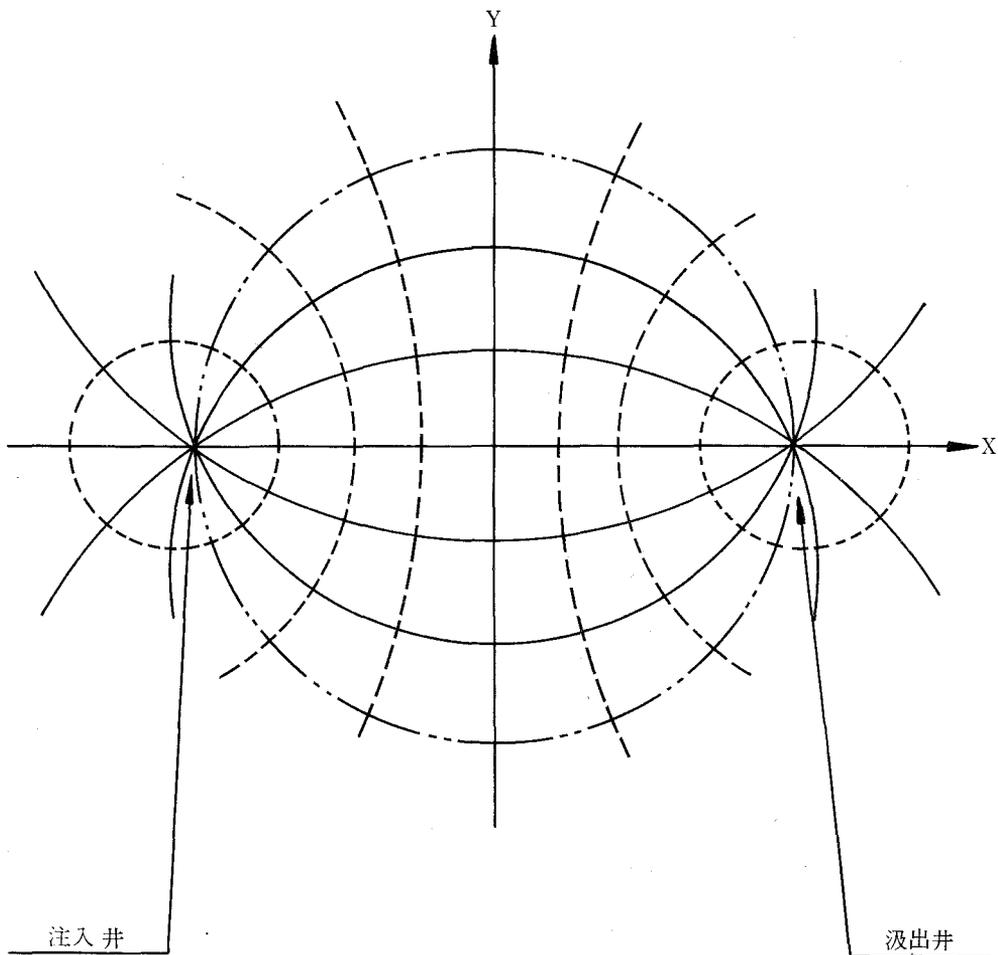


図-3・10 二井系の流線

により模型がひずまないようにした。模型の寸法を図-3・11に示す。模型実験装置は図-3・12のようである。原液貯槽として、内面をふっ素樹脂で coating したドラムかん二本を用い、CO<sub>2</sub> trap をつけて空気中の CO<sub>2</sub> の原液への侵入を防いだ。原液は3-2のカラム実験で用いたのと同じものであり、定流量ポンプを用いて模型槽に送る。ところで本実験では使用する緑砂の量がかかなり多いから、一つの実験で二週間以上連続運転を必要とするが、砂などが万一流出管に詰まったりすると、模型槽内の圧力が異常に上り、模型槽が水圧でこわれることもあり得る。原液は<sup>90</sup>Srを含むので、このような危険のないように模型槽の前に安全水銀マンローメーターをつけ、模型槽内の水圧がある限度に達すると、緊急用貯水槽にまず水銀を押し出し、ついで原液は模型槽へ行かずこの貯水槽に入るようにした。貯水槽は24時間の容量を持たせ、夜に事故が起っても安全なようにした。模型槽内に気泡が生じないように、air trap をつけたのは前の実験と同じである。流出管からすぐ液を流出させると模型槽の上半分が負圧になるので、流出水はゴム管で模型槽より高い所まで導いてから流出させた。

試料砂として用いたのは、3-2の実験で用いたのと同じ緑砂で、表-3・1に示すような粒度分布を持ち、比重は2.53 g/cm<sup>3</sup>である。Caイオンを用いて常温で交換容量を求めると、17.4 meq/100gであり、K<sub>Sr-Ca</sub>は1.33であった。なお、模型槽に詰めた砂の量から、空げき率は48.4%であることがわかった。緑砂の体積は66.5ℓ、空げきの体積29.9ℓ、砂の正味重量は87.1Kgである。

3-3-2 実験方法 原液は3-2で用いたものと全く同じで、1.0N硝酸カルシウムと、0.01N硝酸ストロンチウムを含むpH10の原液を83.3倍に希釈し、pHを7に調整したものである。

模型に砂を詰めてから、炭酸ガスを通して空気と置きかえ、貯蔵原液をpH7.0に調整して砂層内に入れCa型とした。つぎに<sup>90</sup>Srを含まないFeed Solutionで、流出水と流入水のカルシウム濃度が等しくなるまで洗滌した。

0.012N硝酸カルシウムと、 $1.2 \times 10^{-4}$  N 硝酸ストロンチウムを含む中性の液1.2ℓに50μCiの三重水素水を加えて模型に入れ、ついで20ℓの同溶液に100μCiの<sup>90</sup>Srを入れて通水し、あとは0.012N硝酸カルシウムと $1.2 \times 10^{-4}$  N 硝酸ストロンチウムを含む中性の液を通して溶出曲線を求めた。流量は20.0 ml/min と85.2 ml/min の2段階に変化させ、流量85.2 ml/min のときは、中間のSampling 孔から採水した。流量の低いときは、採水が流線を乱す恐れがあるので、中間点からの data は取らなかった。<sup>90</sup>Sr、三重水素水の分析方法は3-2と同じである。実験条件を表-3・7に示す。なお、実験は一ヶ月以上にわたり連続して行ったので、その間の水温の変動をさけるために、サーモスタット付きのクーラーとヒーターを設置して、室を恒温に保った。本実験は、米国カリフォルニア大学(リッチモンド市)で行ったが、さいわい米国西海岸は気温が9、

- ① 流入管 (φ 1.25 mm 真ちゅう管)
- ② 流出管 (φ 1.25 mm 真ちゅう管)
- ③ 中間Sampling管 (φ 3.2 mm 真ちゅう管)
- ④ 中間Sampling管 (φ 3.2 mm 真ちゅう管)

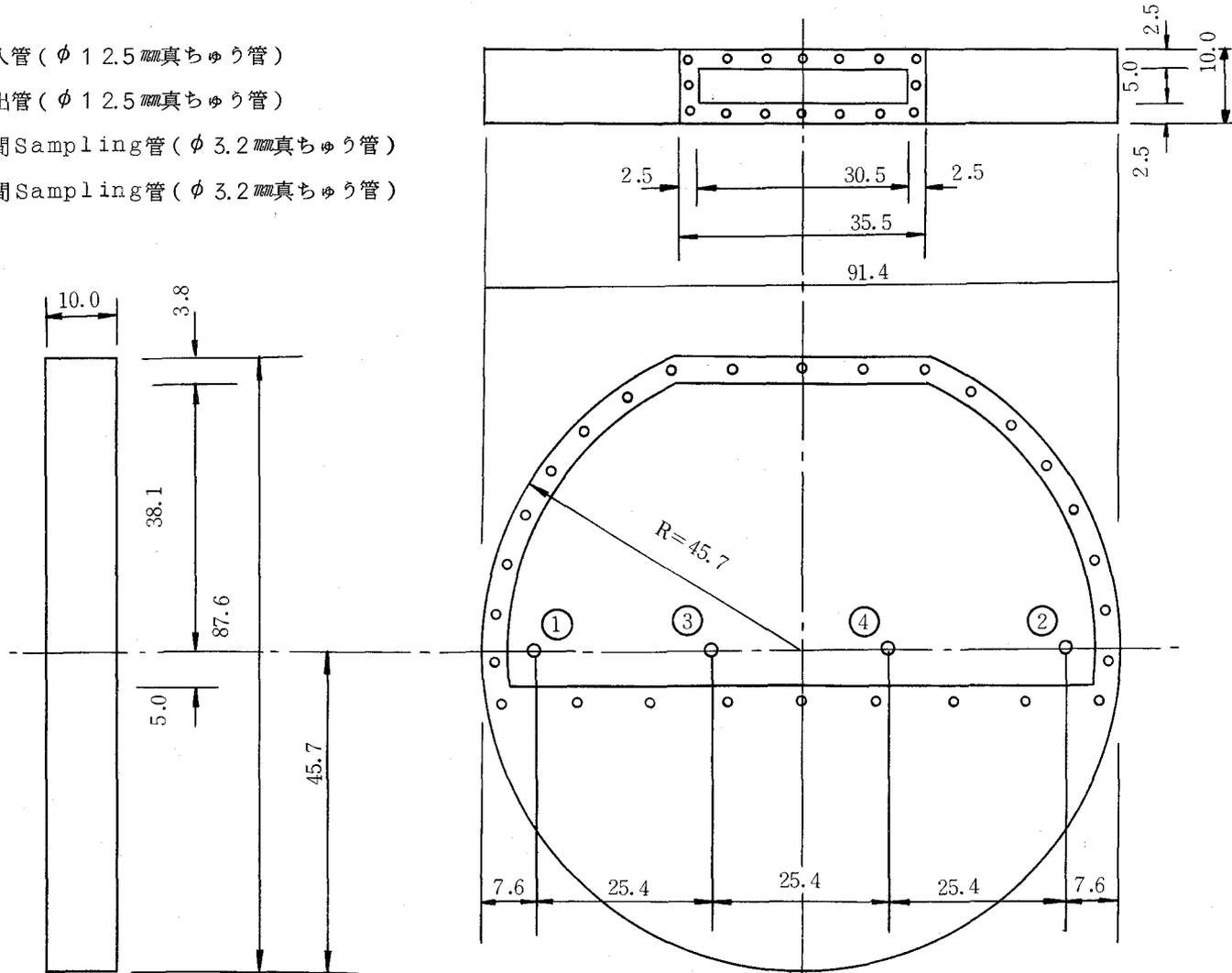
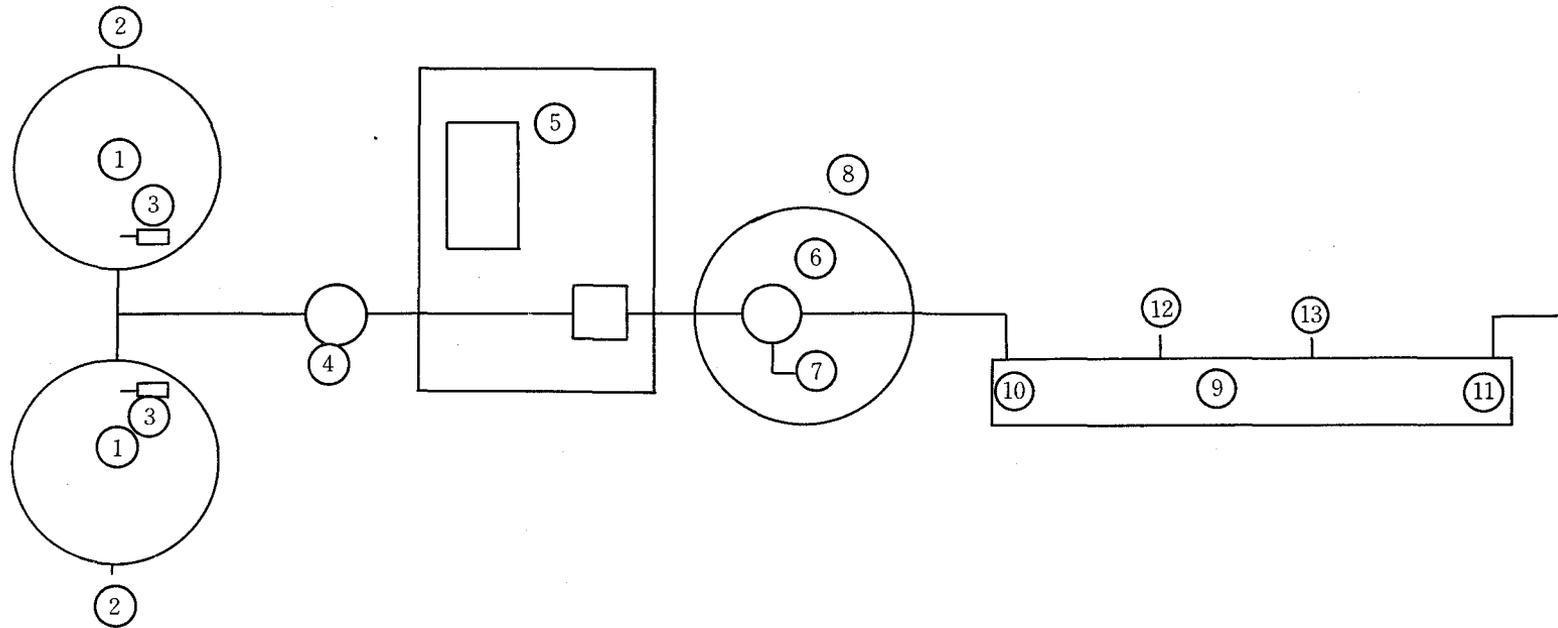


図 - 3・11

二井系模型



- ① 原液槽
- ② 液面計
- ③ CO<sub>2</sub> 除去器
- ④ Glass Wool Filter
- ⑤ 定流量ポンプ

- ⑥ 空気抜き
- ⑦ 水銀マンオメーター
- ⑧ 緊急用貯水槽
- ⑨ 二井系モデル
- ⑩ 流入チューブ

- ⑪ 流出チューブ
- ⑫ Sampling 孔 1
- ⑬ Sampling 孔 2

図 - 3.12 二井系実験装置

表-3.7

二井系モデルの実験条件

実験番号	1		2		3
使用したトレーサー	$^{90}\text{Sr}$	三重水	$^{90}\text{Sr}$	三重水	三重水
トレーサー濃度( $\mu\text{Ci}/\text{m}\ell$ )	$3 \times 10^{-3}$	$8 \times 10^{-2}$	$5 \times 10^{-3}$	$5 \times 10^{-2}$	$5 \times 10^{-2}$
流量( $\text{m}\ell/\text{min}$ )	20.0	20.0	85.2	85.2	85.2
添加時間(min)	900	20	240	6	6

10月を除き10~15°Cの間で変化するだけなので、好都合であった。

3-3-3 実験結果及び考察 三重水素水を用いた拡散実験の結果を図-3.13, 図-3.14, 図-3.15に示す。実験3は実験2と同じであるが、中間点からのSamplingをするために、三重水素水の実験をくり返したものである。

まず流速20mℓ/minの場合の $^{90}\text{Sr}$ の溶出曲線を図-3.16に示す。流速が遅いので、保健物理上重要な溶出曲線の立上りの部分のみを求めた。 $^{90}\text{Sr}$ の溶出が始まったのは、実験開始後約2週間で、33日で実験を中止したが、そのときの溶出は1.4%に達していた。空げき率 $f=0.484$ 、砂の比重 $\rho=2.53\text{g}/\text{m}\ell$ 、質量作用定数 $K_{\text{Sr}-\text{Ca}}=1.33\text{g}/\text{m}\ell$ 、砂の交換容量0.174 meq/g、水中のカルシウム濃度 $C_{\text{Ca}}=0.012\text{meq}/\text{g}$ よりKfを求めると

$$Kf = 1 + \frac{1-f}{f} \rho K_{\text{Sr}-\text{Ca}} \frac{q_{\infty}}{C_{\text{Ca}}}$$

$$= 1 + \frac{(0.516)}{(0.484)} (2.53)(1.33) \frac{(0.174)}{(0.012)} = 51.6 \quad (3-21)$$

を得る。図-3.13の三重水素水の溶出曲線から $^{90}\text{Sr}$ の溶出を予測してみると、図-3.16点線のようになる。予想値は、実験値よりも約3日(時間にして10%)の遅れを見せている。原因は明らかではないが、予測よりも $^{90}\text{Sr}$ の溶出が早かったことは、模型のGreen Sandの持つ交換容量を十分に利用できなかったことを示しているから、間げき水と流入水との水温の微少な差のために、密度流が槽内で起ったのではないかと思われる。

流量が85.2mℓ/minの場合の流出水の $^{90}\text{Sr}$ を図-3.17に、また流出水と中間のSampling孔Tap 1, Tap 2の $^{90}\text{Sr}$ 溶出を図-3.18に示す。流入口から流出口への距離の $\frac{1}{3}$ 点にあるTap 1は、流入口より25cm離れているが、注入後2時間で早くも $^{90}\text{Sr}$ が表われ、2日目にpeakに達し、5日間でほぼ全量が通過した。peakの高さは注入濃度のほぼ10%である。流入口より、流出口への距離の $\frac{2}{3}$ の点にあるTap 2への $^{90}\text{Sr}$ の溶出は3日後に始まり、5日後にpeak(5%)に達し、10日間で消失する。流出口への $^{90}\text{Sr}$ 到着は、注入開始後6日で、9日後に

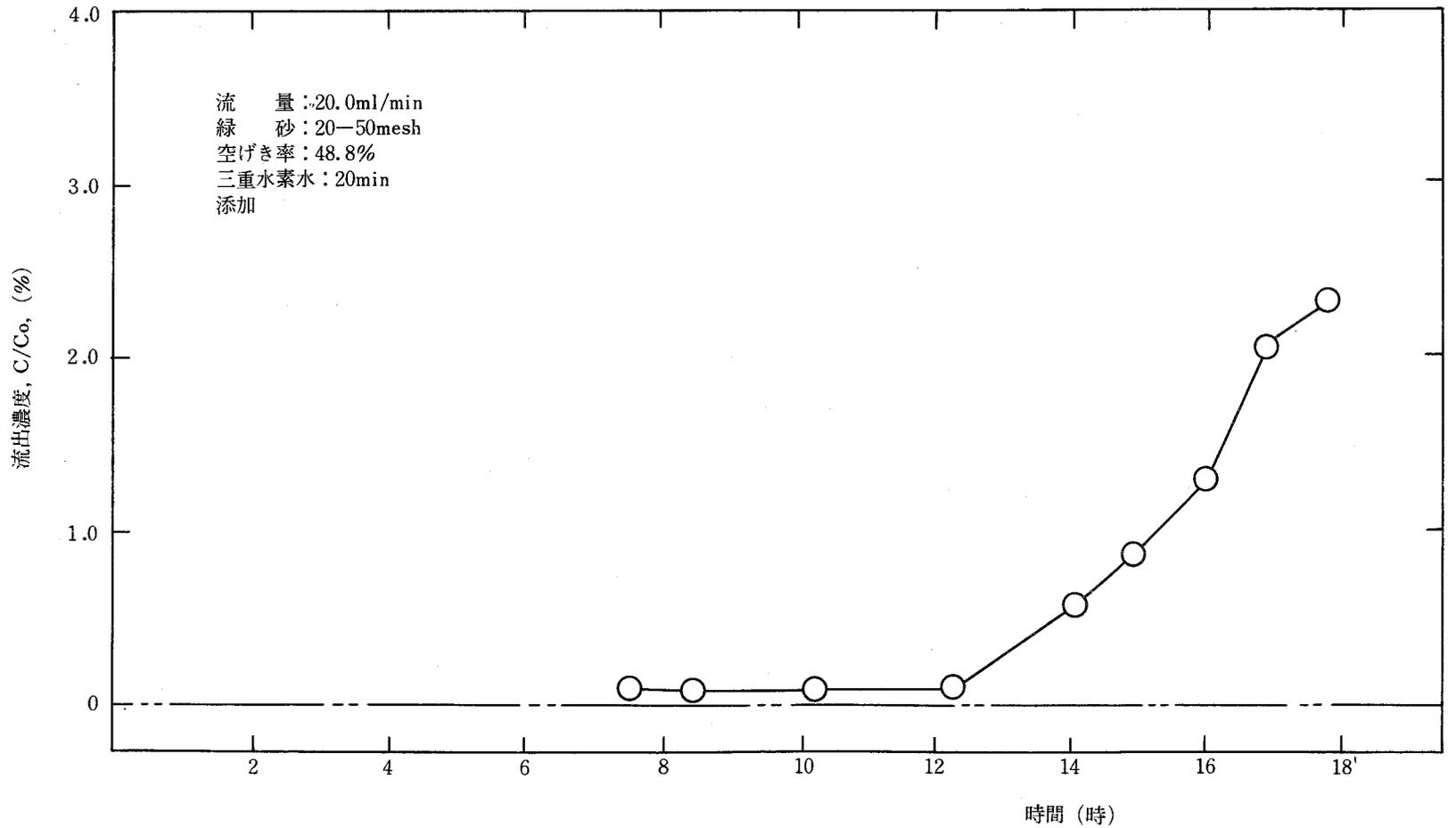


図 - 3.13 二井系モデルにおける三重水素水溶出曲線 (実験-1)

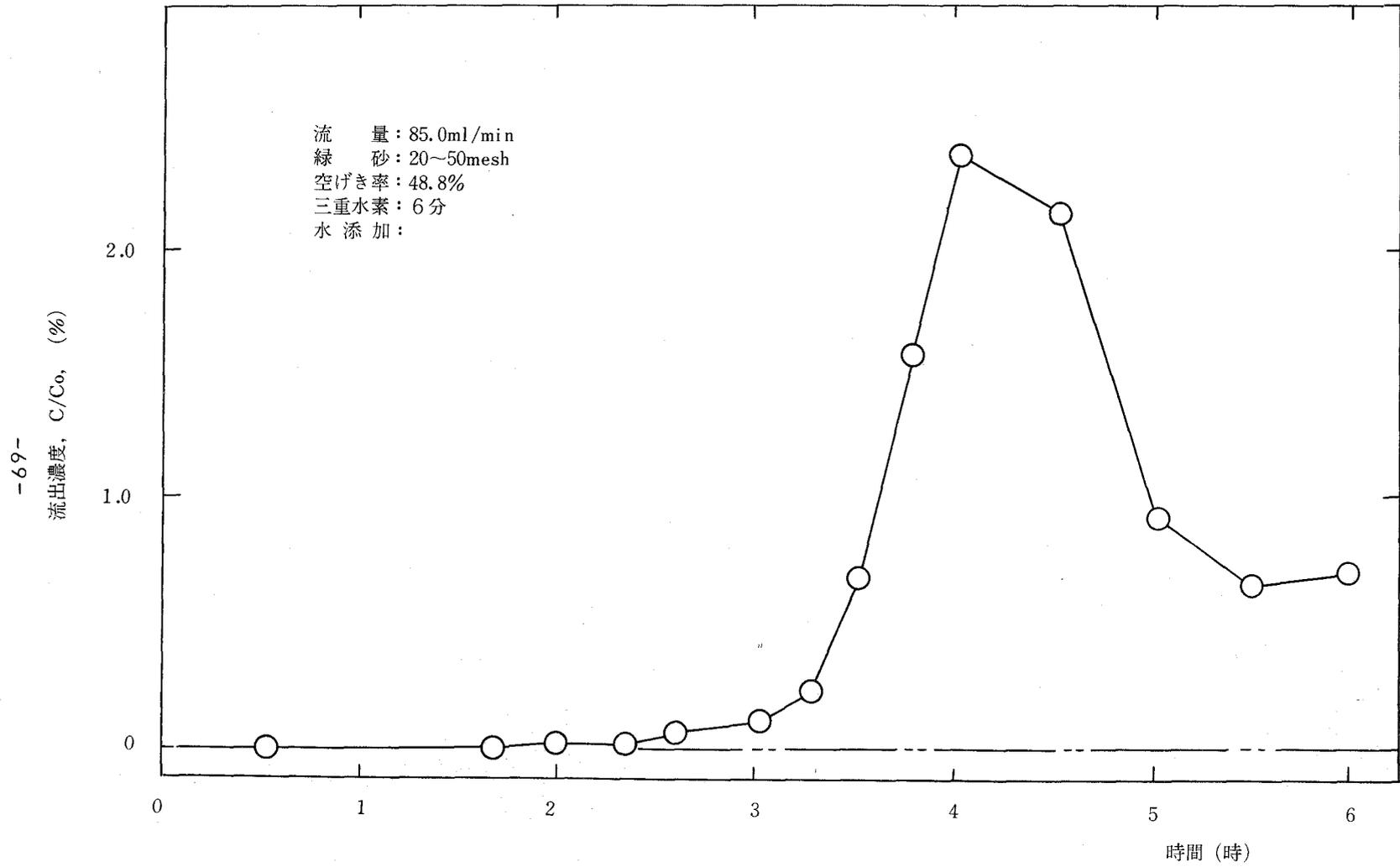


図 - 3.14 二井系モデルにおける三重水素水溶出曲線 (実験-2)

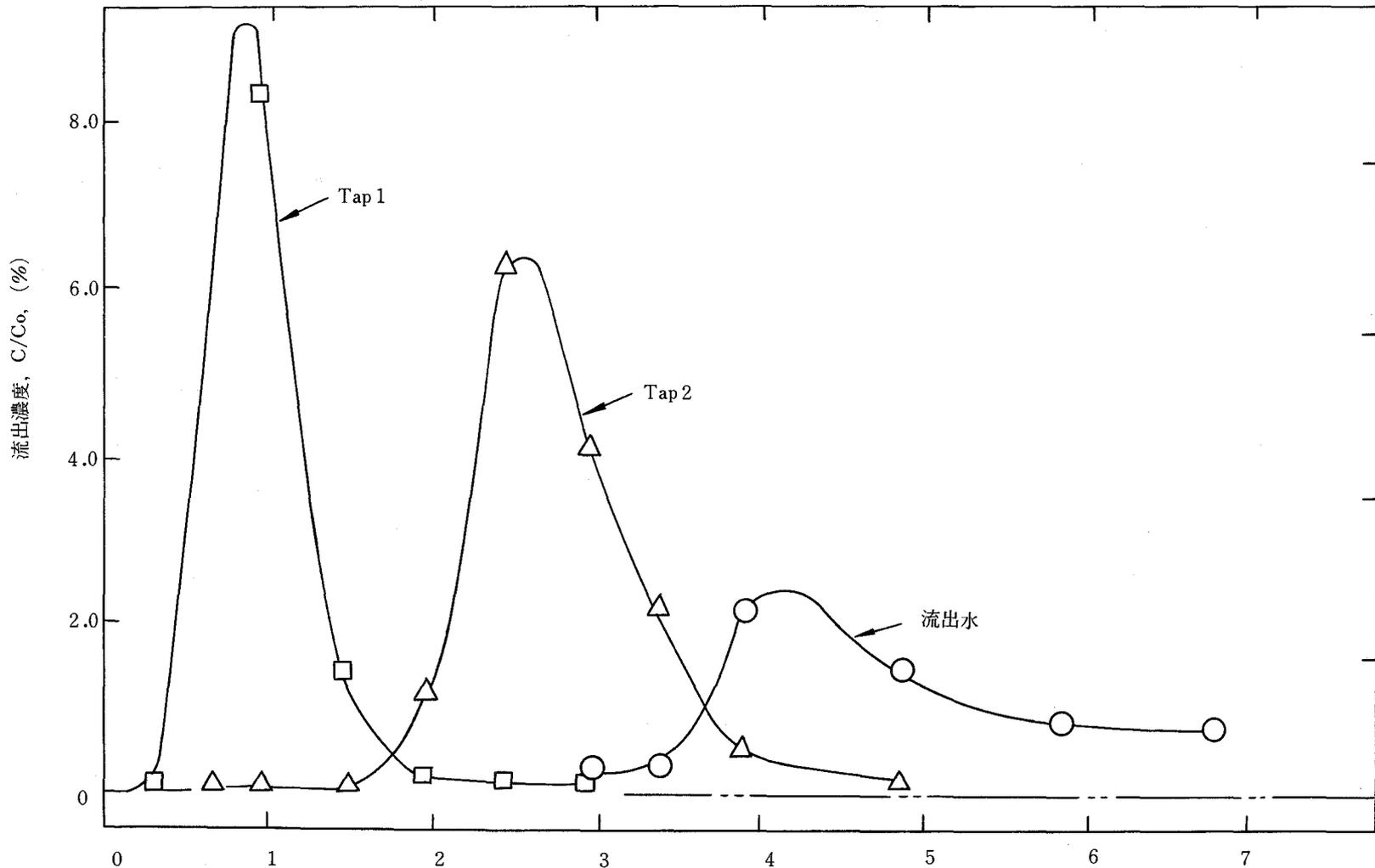


図 - 3.15 二井系モデルにおける三重水素水溶出曲線 (実験-3)

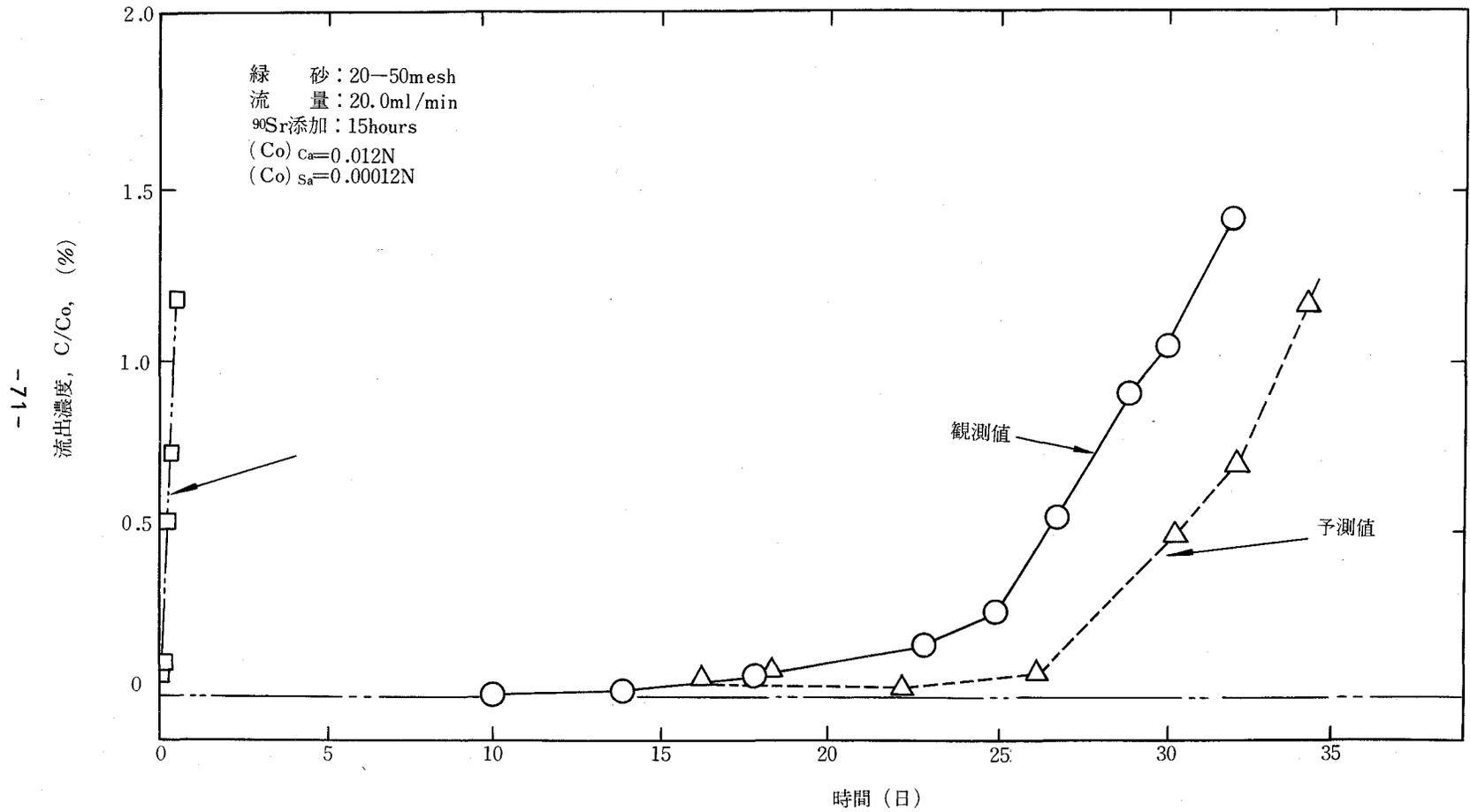


図 - 3.16 二井系モデルにおける  $^{90}\text{Sr}$  溶出曲線 (実験-1)

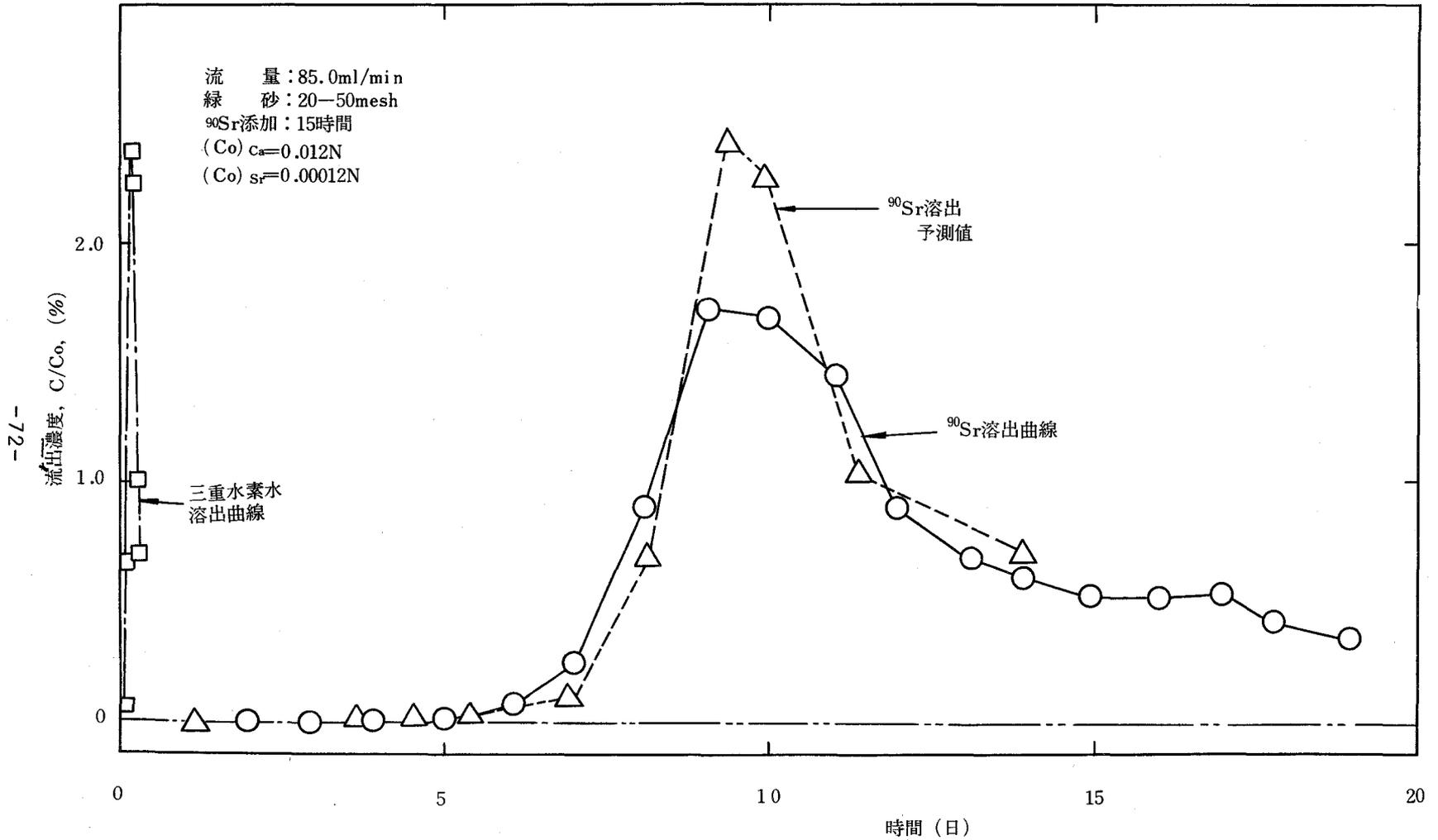


図 - 3.17 二井系モデルにおける  $^{90}\text{Sr}$  溶出曲線 (実験-2)

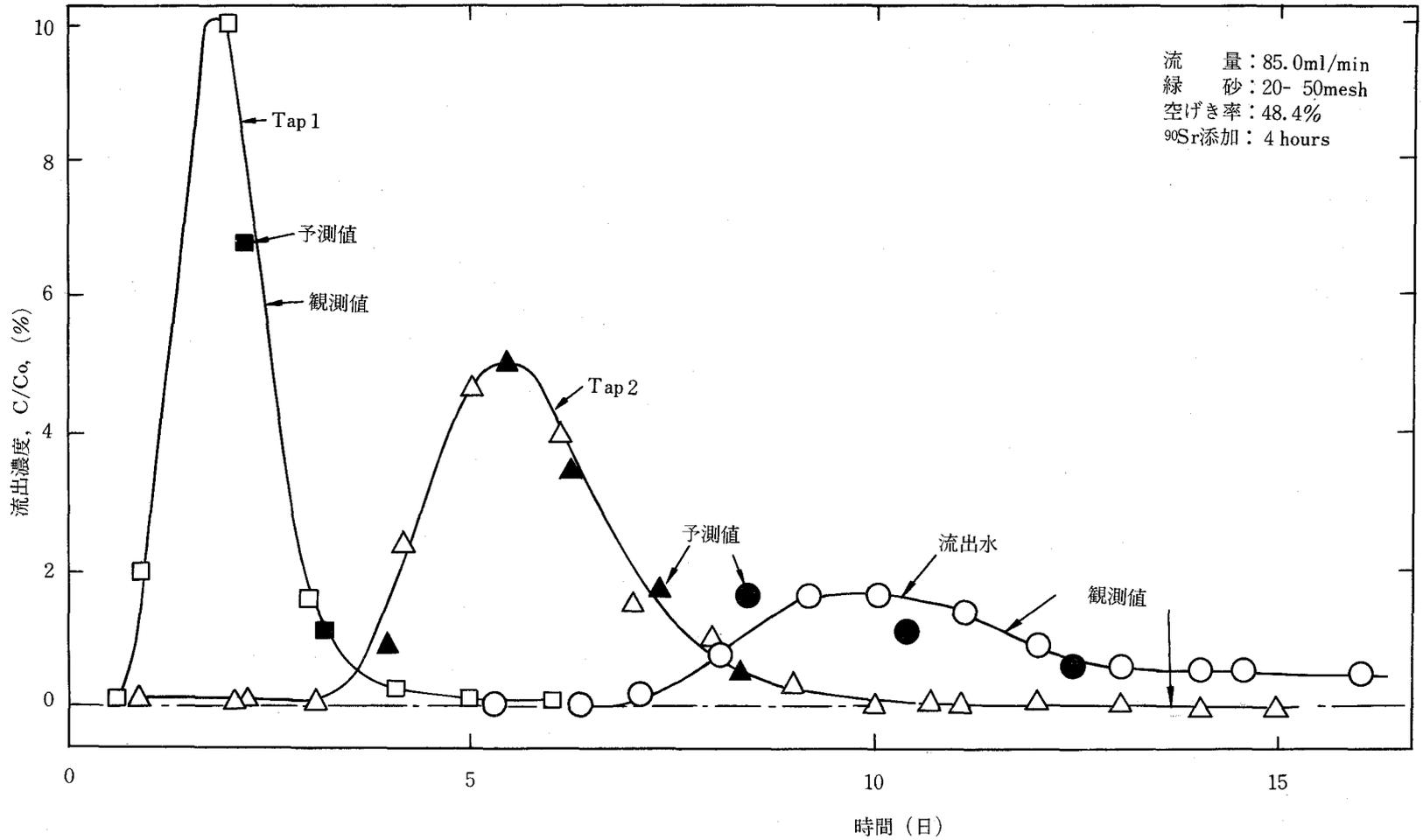


図 - 3.18 二井系モデルにおける <sup>90</sup>Sr 溶出曲線 (実験-3)

1.8%の溶出 peak を示し、16日後も溶出は続いていた。中間 Tap の溶出曲線は数日で peak を示し、最高溶出点までの時間の3~4倍の時間でほぼ完全に消失する。これに対して流出口の溶出曲線は、peak に達した後溶出がかなり長く、高い濃度で続くが、これは二井間を結ぶ線分から離れた経路を通った $^{90}\text{Sr}$ が、遅く流出口に到着するためである。

実験2の三重水素水溶出は、流線を乱すことを恐れて途中から採水せず、流出水のみについて求めたが、その結果から予測した $^{90}\text{Sr}$ の溶出と、実験2の $^{90}\text{Sr}$ 溶出の実測値とを比較すると図-3・17のようになる。実測値と予測値とは定性的にも、また peak の到達時間もよく一致している。しかし peak の濃度は予測値が2.3%なのに対して、実測値は1.8%にすぎなかった。

中間点 Tap 1, Tap 2の $^{90}\text{Sr}$ 溶出を予測値と比較したのが図-3・18である。流線を乱すことを恐れてあまり多くの試料を取らなかったために、正確な比較は困難であるが、両者はきわめて良く一致している。ことに Tap 2の溶出曲線は明確に予測値と比較ができ、両者は同じ曲線上に乗っている。この図から、流出口における溶出曲線よりも Tap 1, Tap 2の溶出曲線の方が明確で、かつ早く溶出が始まるから、Monitoring 用として、二井間に観測井を設けると、流出井における放射性物質溶出の予測に好都合であることがわかる。

本実験により、著者の方法はカラムばかりでなく、二次元の複雑な流れに対しても応用し得ることがわかった。実験的に予測値と実測値が10%ていど差を示した場合もあるが、二井系のように複雑な流れに対する溶出曲線予測の場合は、止むを得ないであろう。

### 3-4 野外実験

前節までは、実験室内でGreen Sand (緑砂)を用いて実験し、理論の実用性を確かめたが、複雑な実際の地層についても、理論をあてはめられるかどうか検討する必要があるので、粘土層にはさまれた、厚さ1~2mの被圧帯水層に二井系を作り、 $^{89}\text{Sr}$ を注入して前節で行った二井系モデル実験を野外に拡大して実施した。

#### 3-4-1 実験に使用した地層

実験は米国カリフォルニア大学リッチモンド野外実験場で行った。同大学では1951年に放射性廃水地下処理の実験のために井戸群を作ったが、実験が成功せず放置されていたものを修理、再使用したものである。野外実験場と井戸の詳細は、文献(8)に報告されている。実験場の模式図を図-3・19に示す。帯水層は地表面下約30mにあり、厚さは1~2mで、上下を不透水性の粘土層にはさまれた、礫まじりの砂層である。砂の有効径は0.20~1.5mm、均等係数は3~28であった。実験場は海岸に面し、海岸線から内陸へ約80mの位置にあるが、被圧地下水は海面より約3.6m高い水圧を有し、その水圧勾配は海に向かって北東から南西に $\frac{3}{1000}$ 傾斜している。

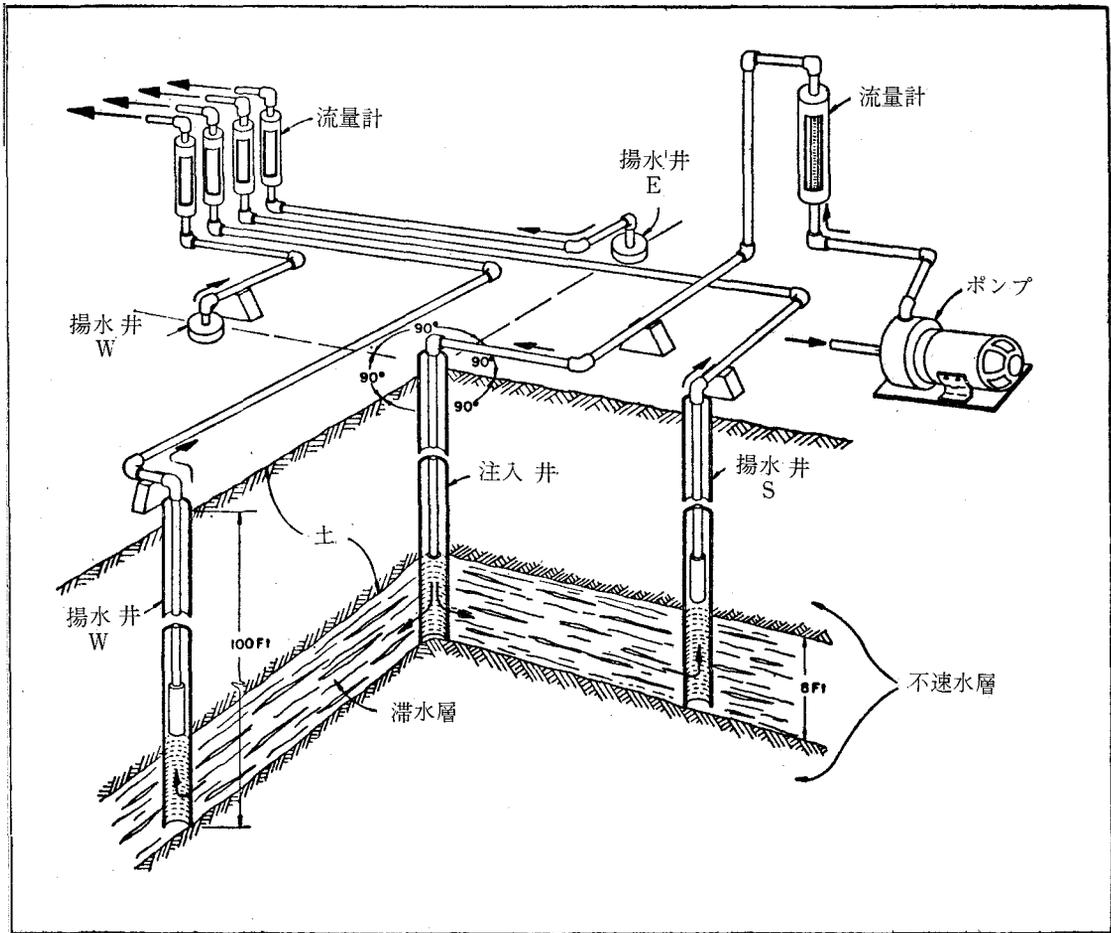


図 - 3・19 野外実験場の透視図

中心に位置する注入井は直径30cmの鋼管で、帯水層のところだけストレーナーを切っている。廃水を長時間にわたり注入処理すると、廃水中の浮遊物や細菌の増殖などのために、注入損失水頭が徐々に増加するから、一年に一度は地下水を逆に汲出して、ストレーナーにつまったごみを取り出す必要がある。そこで井戸の上には15馬力のポンプをつけ、揚水用パイプを地上から2.25mの深さのところまで入れた。このため注入井は二重管構成になっている。

注入井の周囲には、図-3・20に示すように直径15cmの観測井を23本配置している。これらの井戸も帯水層にストレーナーをあげ、地下水を汲上げられるようになっている。Samplingのためには、この井戸の中にさらに帯水層に達するまでφ5mmのパイプを降し、Sampleは井戸内に入れた5mmパイ

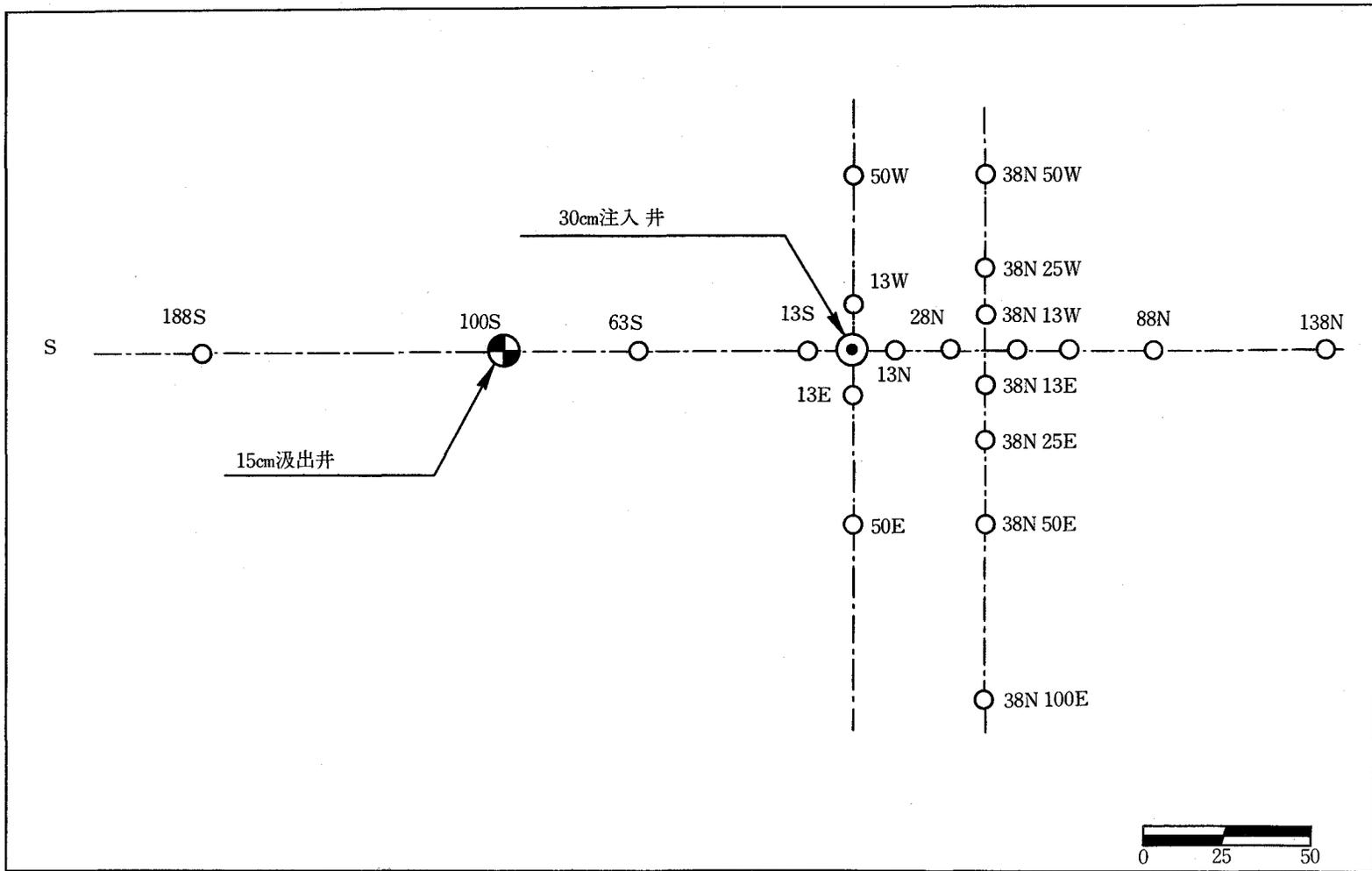


図 - 3.20 二井系野外実験場の注入井，揚水井，観測井の位置

ブから、地下水を数分汲み上げてから採取した。井戸の位置は注入井を原点とし、直交座標で示している。なお、場所が米国であるので、座標は feet で示す。たとえば、38N50Wとは、注入井から北に11.5 m (38 feet)、西に15 m (50 feet) はなれていることを示す。揚水井は注入井から南方30 mのところであり、直径10 cmの1 HP水中ポンプを、 $\phi$  3.8 cmのパイプの先端につけ、揚水井中25 mの深さのところへ降して、地下水を揚水した。なお、この二井系は注入井から揚水井へ、3.9 m (13 feet) と19 m (63 feet) のところに観測井を持っている。帯水層の透水係数は、揚水試験によって求めた。28 Nから連続的に揚水し、24時間たって水面が平衡を保ってから、各観測井の水位を実測したところ、平均的な透水係数として $2.8 \times 10^{-2}$  cm/sec を得た。これは文献(8)に出ている、当実験場建設時の測定値とよく一致している。

実験を始める前に、地下水水位を観測し、等水位を描いたところ図-3・21のように、北東から南西に流れる地下水流が観測できた。この線が完全に平行、等間隔でないところからみても、地層が不均一であることがわかる。井戸採掘時に分取された柱状試料土につき、酢酸アンモニウム法で交換容量を求めると、意外に均一な値で5.88 meq/100 g から8.86 meq/100 g の範囲に入っていた。帯水層は、物理化学的にはかなり均質であるといえる。なお、二井系運転時の水位を図-3・22に示す。

3-4-2 実験方法 放射性廃水の注入装置を図-3・23に示す。①は給水系で、注入水には同実験場の防火用水を用いた。防火用水はこの被圧地下水の上にある地下水を揚水したもので、両者は全く関係がない。注入水の化学組織を表-3・8に示す。季節によって、その数値は多少の変動を示している。これを受水槽に入れ、Overflowにより水位を一定に保つ。この水を2馬力のギャーポンプで揚水し、注入井に導く。給油のために、ポンプは時々止めねばならぬから並列二連とし、連続して注水できるようにした。流量の調節はモーターの回転数によることはできなかったので、バイパス valve⑥で調節した。流量は、Orifice meterで測定し、自動記録する。一枚の記録紙に一週間の流量と、積算注入量を記録する。注入量、および揚水量は $64 \text{ l/min}$  (約 $1 \text{ l/sec}$ ) 一定になるように、一日に二度調節した。

注入放射性物質としては $^{89}\text{Sr}$ を選んだ。これは $^{90}\text{Sr}$ と化学的挙動が同じで、半減期が短いために衛生上の安全性が高いので、野外実験に好都合である。なお $^{89}\text{Sr}$ はdaughterを持たぬので、Sampleを2週間貯蔵してから放射能を測る必要はなく、すぐ放射線測定器にかけられる。受水槽の中に二個の液面形付190 lステンレス製ドラムかんと、二台の定流量ポンプを置き、ドラムかんに $^{89}\text{Sr}$ と三重水素水を含む原液を作って、これを定流量ポンプで、注入ポンプ④のsuction側に注入し、注入井戸の中で三重水素水は $1.6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ は $3.5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$  に保つようにした。注入した三重水素水は1.48 Ci、 $^{89}\text{Sr}$ は6.96 mCiである。注入は、三重水

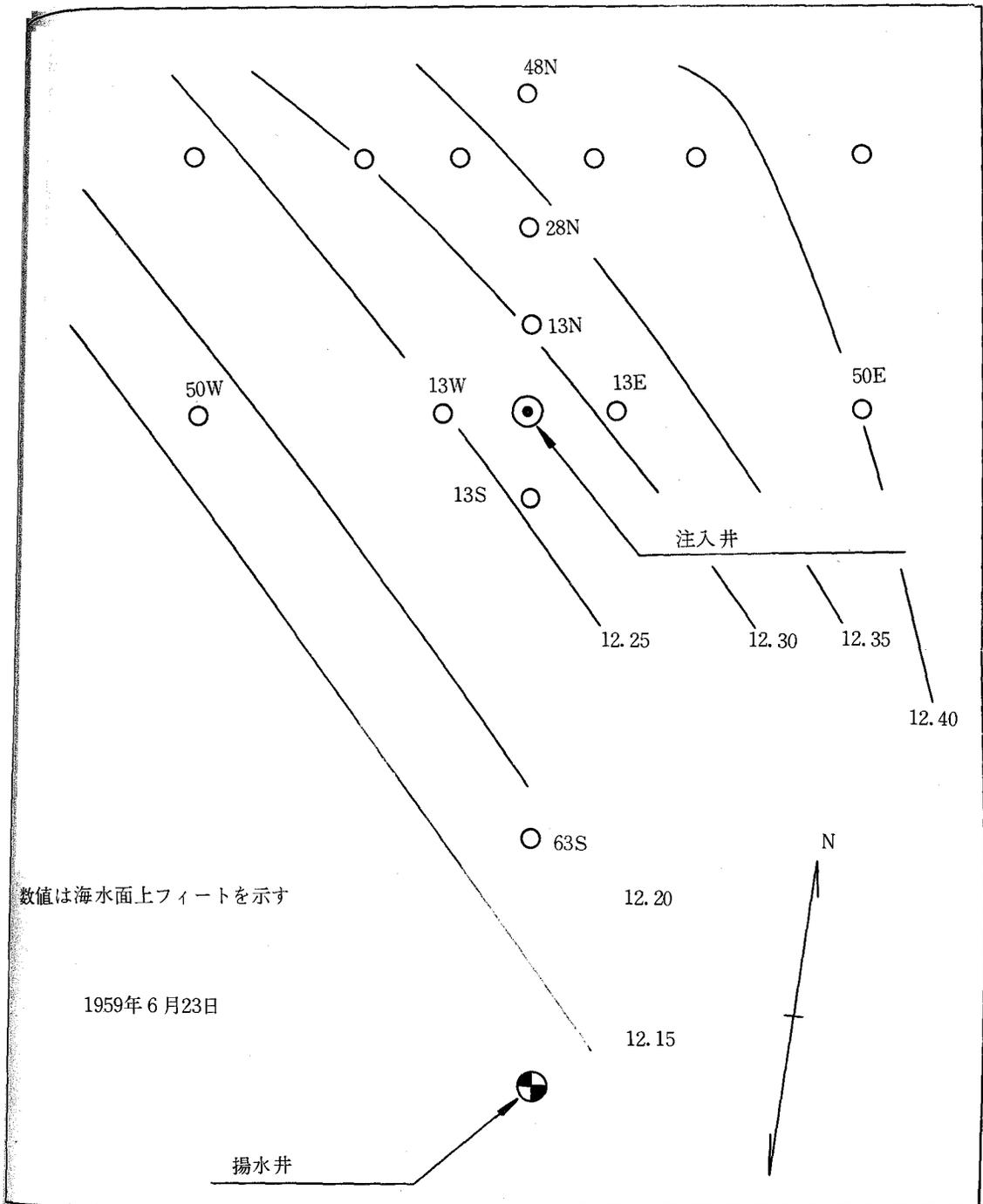


図 - 3・21 自然状態の地下水等水位線図

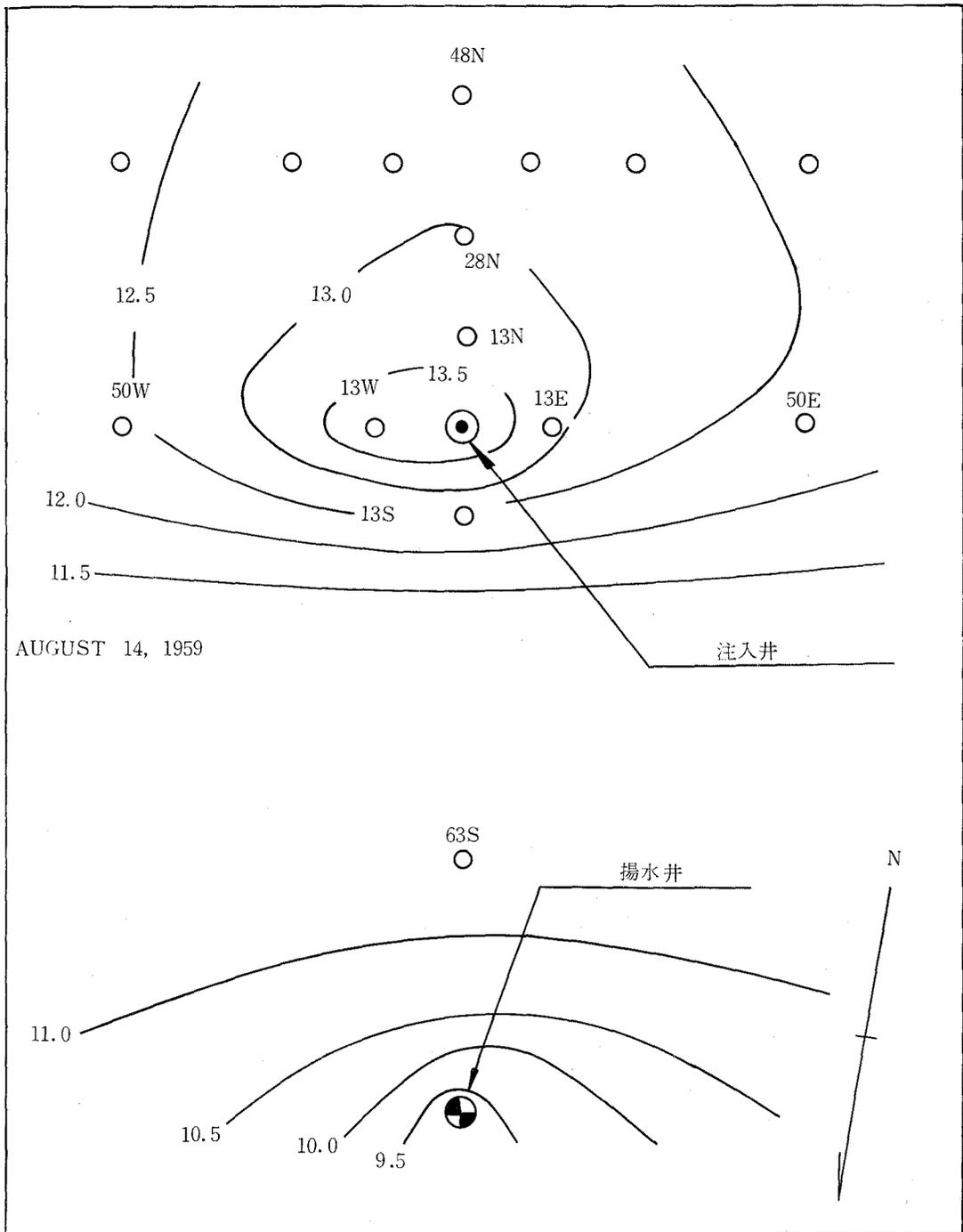


図 - 3・22 二井系運転時の地下水位

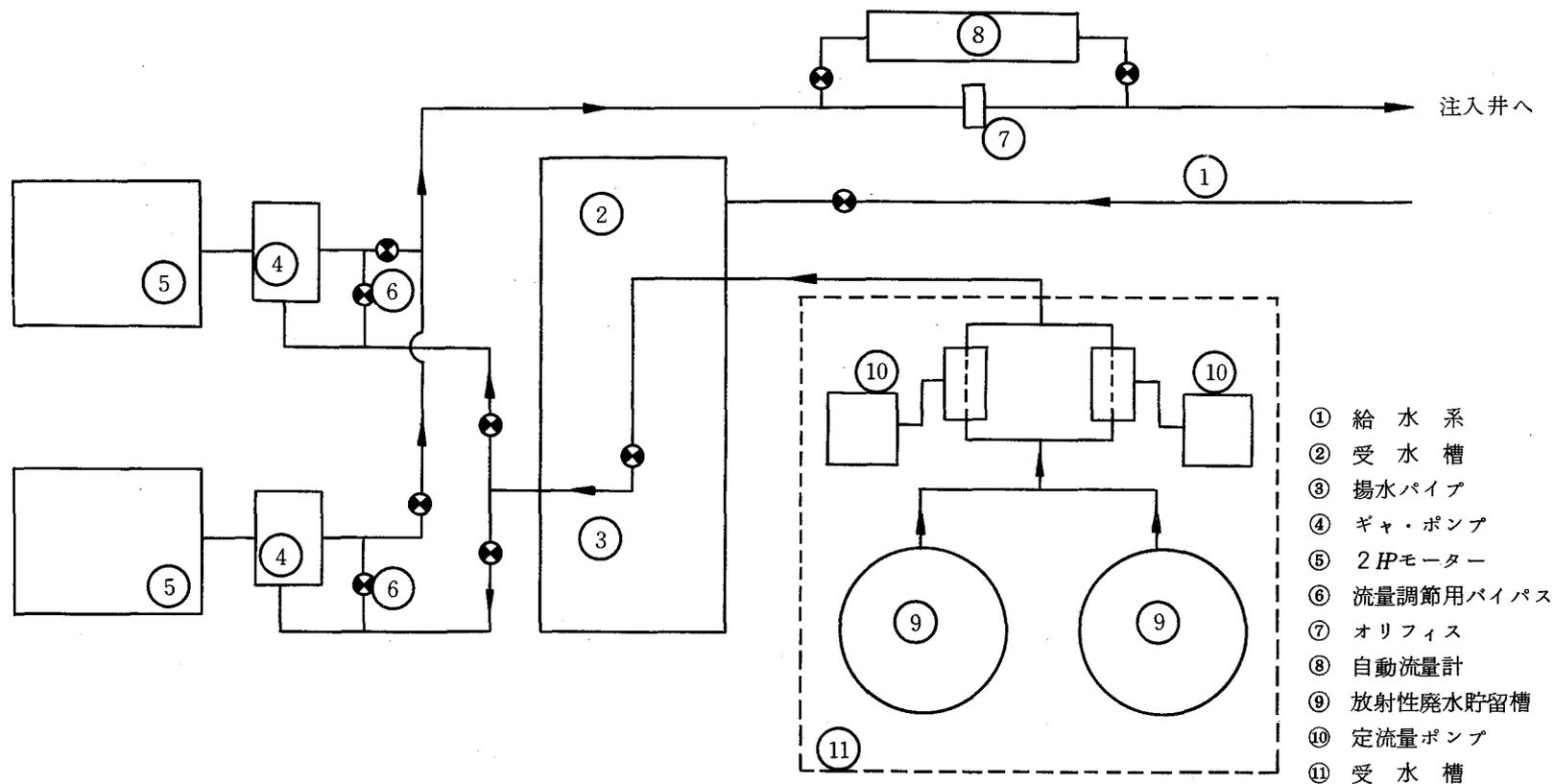


図 - 3.23 放射性廃水地下注入装置

表 - 3・8 注 入 水 の 化 学 組 成

単位 [ meq / ℓ ]

日 イオン	1952.3	1957.6	1960.1	1960.6	1960.9
Na	3.60	3.04	3.50	4.22	4.26
K	0.04	0.05	0.04	trace	-
Ca	3.70	3.60	3.81	3.50	5.00
Mg	5.05	6.63	7.21	9.00	8.15
Fe	0	-	0	-	-
pH	6.7	-	6.7	6.5	7.1
Cl	4.03	4.29	3.94	4.60	4.78
SO <sub>4</sub>	3.59	4.37	6.73	7.88	8.12
PO <sub>4</sub>	trace	-	0	-	-
NO <sub>3</sub>	0.16	0.45	0.06	-	-
CO <sub>3</sub>	0	0	0	0	0
HCO <sub>3</sub>	4.07	4.54	3.86	4.42	4.67
NO <sub>2</sub>	trace	-	-	-	-

素水が昭和34年7月24日から8月2日までの9日間、また<sup>89</sup>Srは7月23日から8月16日までの24日間であった。注入後、350日間放射能を含まぬ地下水の注入を続け、揚水井と観測井における放射能濃度を求めた。

なお、細菌の増殖等により、注入井の損失水頭が増加するので、注入に先立ち150ℓ/minの速度で注入井から地下水を汲出し、注入抵抗を下げるるとともに、時々塩素ガスを注入水に混入して殺菌した。

放射能の測定は、三重水素水については3-2節と同じである。<sup>89</sup>Srについては、試水300mℓをビーカーに入れ、約10mℓになるまで蒸発させ、内容物を直径4.5cm、深さ0.6mmのアルミ製計測皿に移した。<sup>89</sup>Srは純粹の状態では入手することは困難で、わずかではあるが<sup>90</sup>Srを含む。実験に使用した<sup>89</sup>Srは、実験開始時に4.57%の<sup>90</sup>Srを含んでいた。<sup>90</sup>Srの半減期が20年、<sup>89</sup>Srは54日なので、実験終了時の350日後には、<sup>90</sup>Sr + <sup>90</sup>Yの放射能は8.1%に達する。そこで実験の後半は、乾燥試料を製作してから測定まで二週間デシケーター中に貯蔵した。試料は150mgていどの蒸発残留物があり、自己吸収が問題になる。また、測定器も日により効率が変わるので、測定のために標準注入原水より作成した試料を比較測定し、C/C<sub>0</sub>を求めた。

### 3-4-3 結果と考察

揚水井(100S)と中間の観測井13S, 63Sにおける三重水素水の溶出曲線を図-3・24に示す。なお、この図には参考として、 $^{89}\text{Sr}$ の溶出曲線も一部示した。13Sには51時間後に三重水素水が検出され、注入開始後6.7日で最大濃度に達した。63Sには130時間で注入水が到達し、9.7日で最大濃度点が観測された。揚水井での三重水素水濃度の最高値は11日後であった。ところで、理論的には注入した三重水素水は、かなり長い時間を経れば、すべて揚水井から回収されるべきものである。図-3・24の揚水井における溶出曲線を積分して回収率を求めると72%になった。濃度が低すぎるために、測定にかからなかった部分もあると考えられるが、注入三重水素水の28%は観測されることなく、どこかへ流失したことになる。これはつぎの五井系の野外実験でも同様の結果が得られている。

$^{89}\text{Sr}$ は $3.5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ の濃度で24時間注入したが、その溶出曲線を各井戸の場合につき図-3・26~図-3・31に示す。注入井と揚水井とを結ぶ線上の観測井戸で、注入井に最も近い13Sには、24時間後に $^{89}\text{Sr}$ が現われ、21日後に最大濃度21%に達した。同じく63Sは13Sほど明瞭ではないが、 $^{89}\text{Sr}$ の到達は、注入開始後70日と90日の間にあるようである。最大濃度は170日後に観測され、流出濃度は15%であった。揚水井は3-3の実験でも明らかなように、経路の異なる流線を集めているために、 $^{89}\text{Sr}$ の到達時間も、最大値も明確ではないが、およそ溶出点は150日、最大濃度点は200日頃に存在するようである。

注入井から13フィート離れて、これをとりまくように配置された4本の観測井のうち、13Wが特異な溶出曲線を示した。この井戸は、他の井戸がいずれも100%の流出濃度に達しなかったのに対し、注入後13日で濃度が注入水の濃度と等しくなっている。これは注入井の目づまりを取るために、幾度か注入井から揚水しているうちに、13Wと注入井間の細砂が洗い取られ、1つのchannelが出来たものであると推定される。図-3・22の水位図でこの二井間の水位差がほとんど無いことも、この事実を裏付けている一つの証明になるであろう。

13Eは、注入後40日で28%の流出濃度を記録し、以後徐々に減少した。また13Nには、20日後に61%の溶出濃度が観測された。

ところで、 $^{89}\text{Sr}$ の溶出曲線は、 $K_f$ がわかれば、三重水素水の単位溶出曲線から推定できるはずである。単位溶出曲線は、瞬間的に三重水素水を注入して、その溶出曲線を求めても良いし、また、ある期間連続して注入し、その溶出曲線から、式(2-45)を用いて計算することもできる。図-3・26は三重水素水を9日間注入して求めた、13S, 63Sおよび揚水井における溶出曲線であり、これから1時間注入に対する溶出曲線を求めると、図-3・27の黒点のようになる。一方、三重水素水を6時間注入して、単位溶出曲線を求めると、同図中の白い四角(13S), 三角(63S), 丸(100S)のようになった。13Sの場合、9日連続注入の結果から得たpeakは約2%であった。

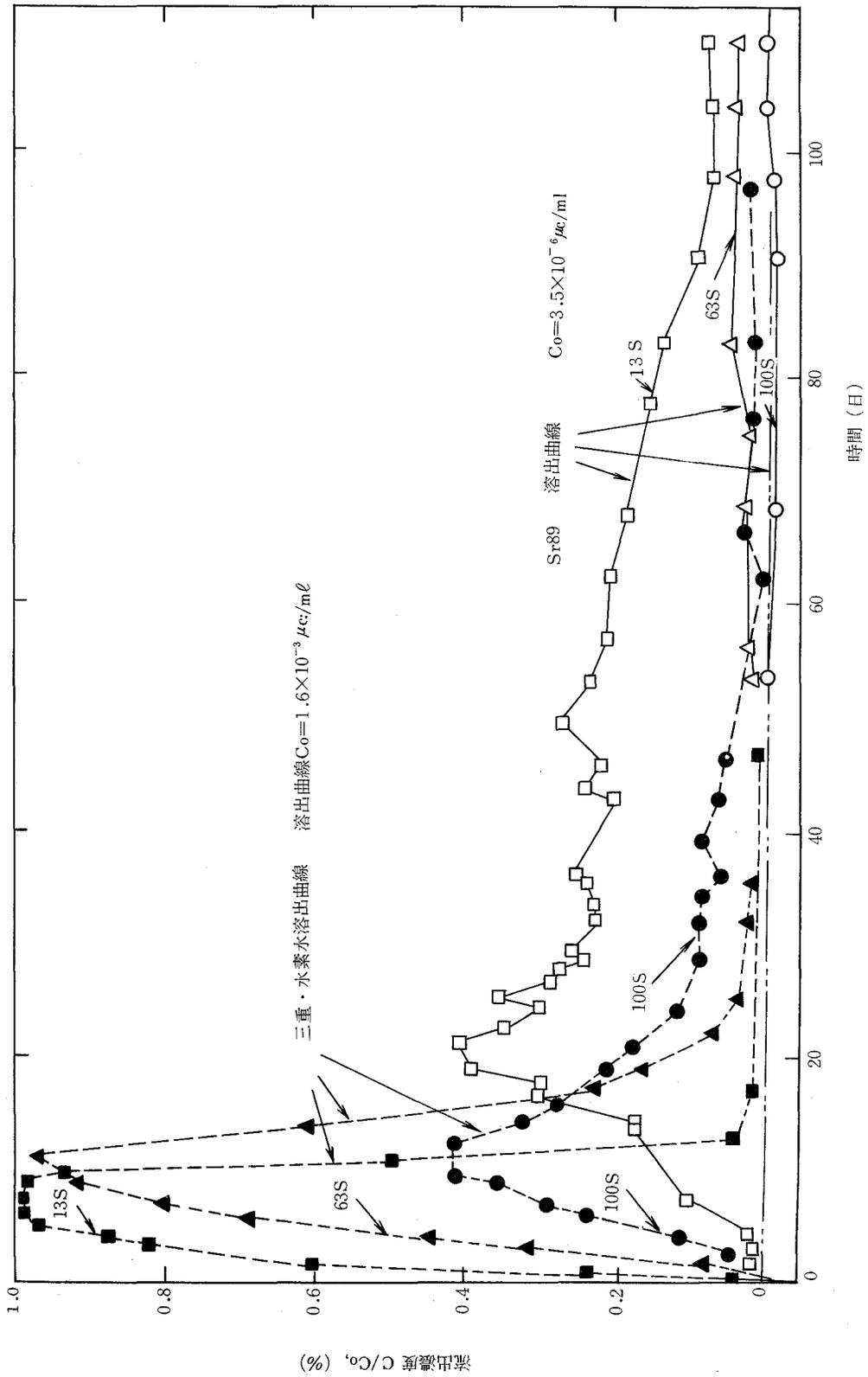


図 - 3.24 三重水素水の溶出曲線

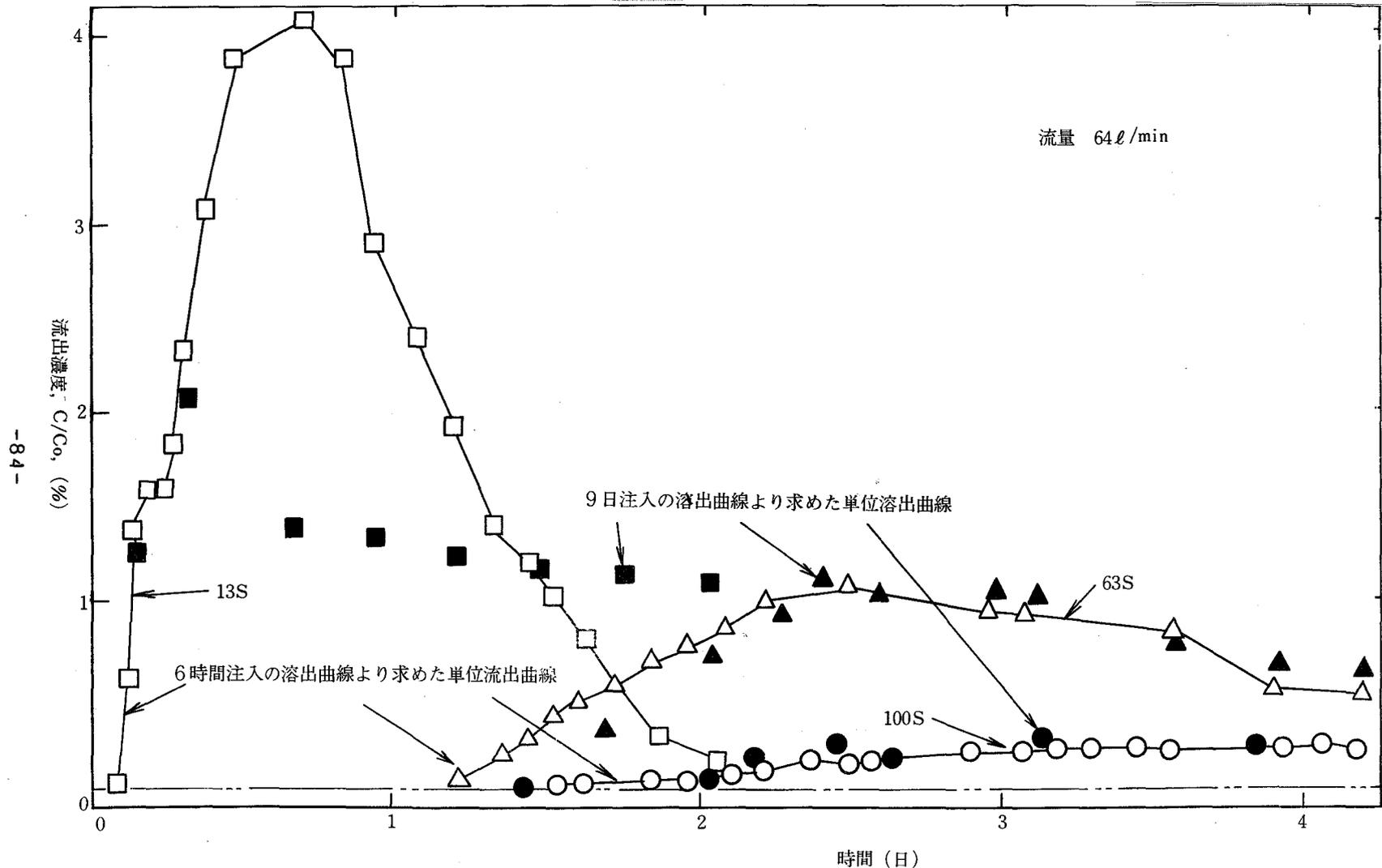


図 - 3.25 2井系野外実験における1時間注入の場合の単位溶出曲線

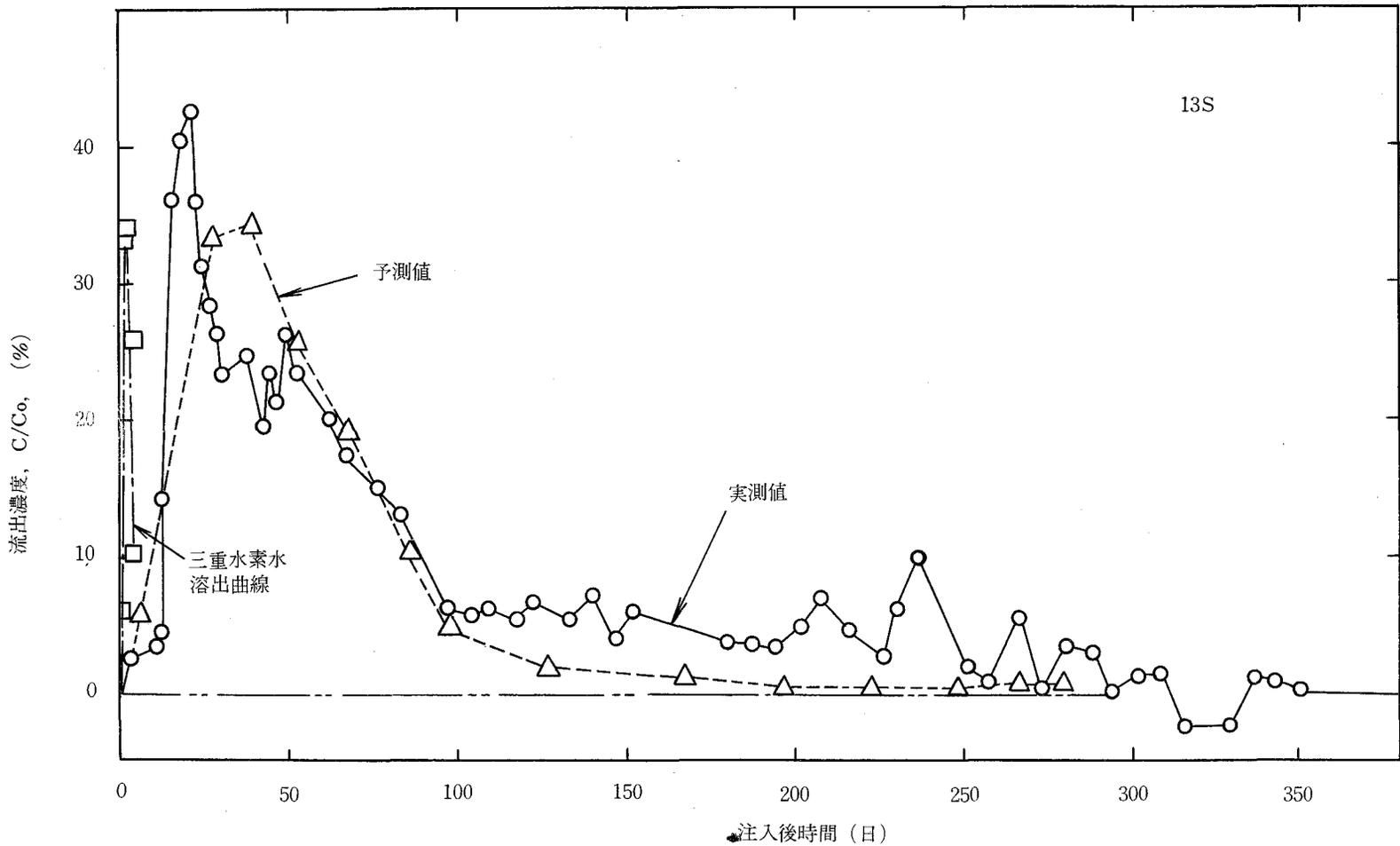


図 - 3.26  $^{88}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (13S)

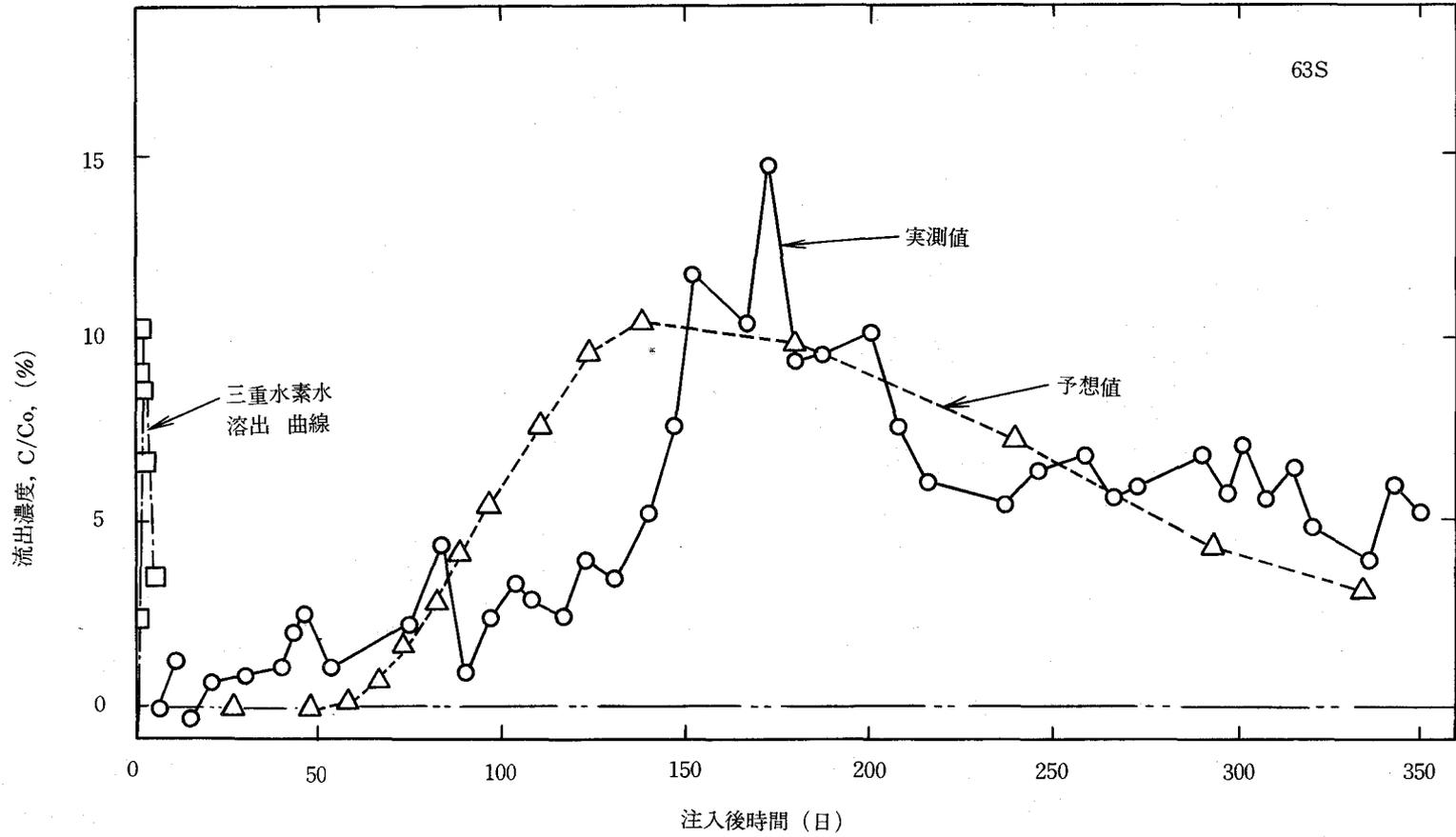


図 - 3.27  $^{89}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (63S)

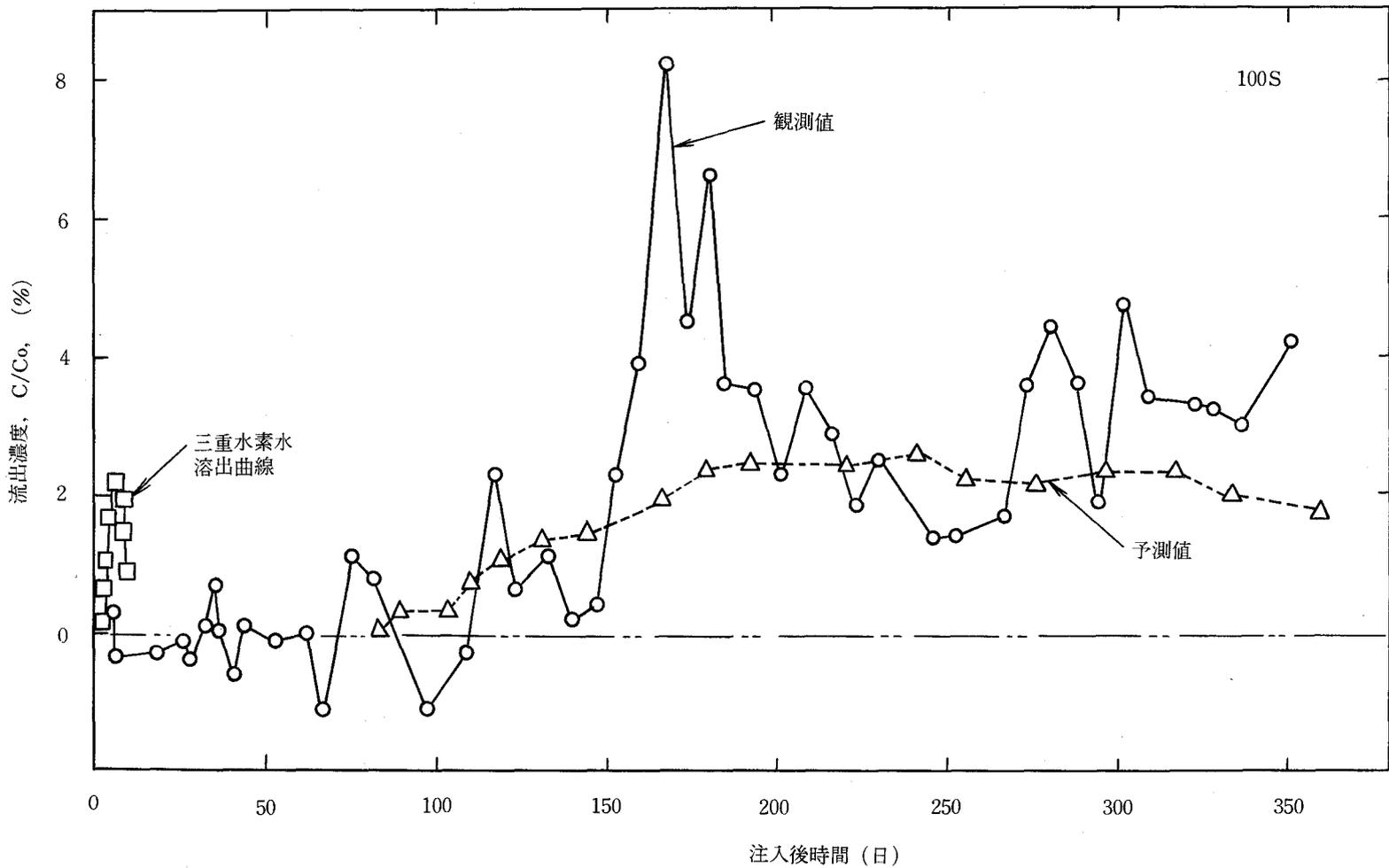


図 - 3.28  $^{89}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (100S)

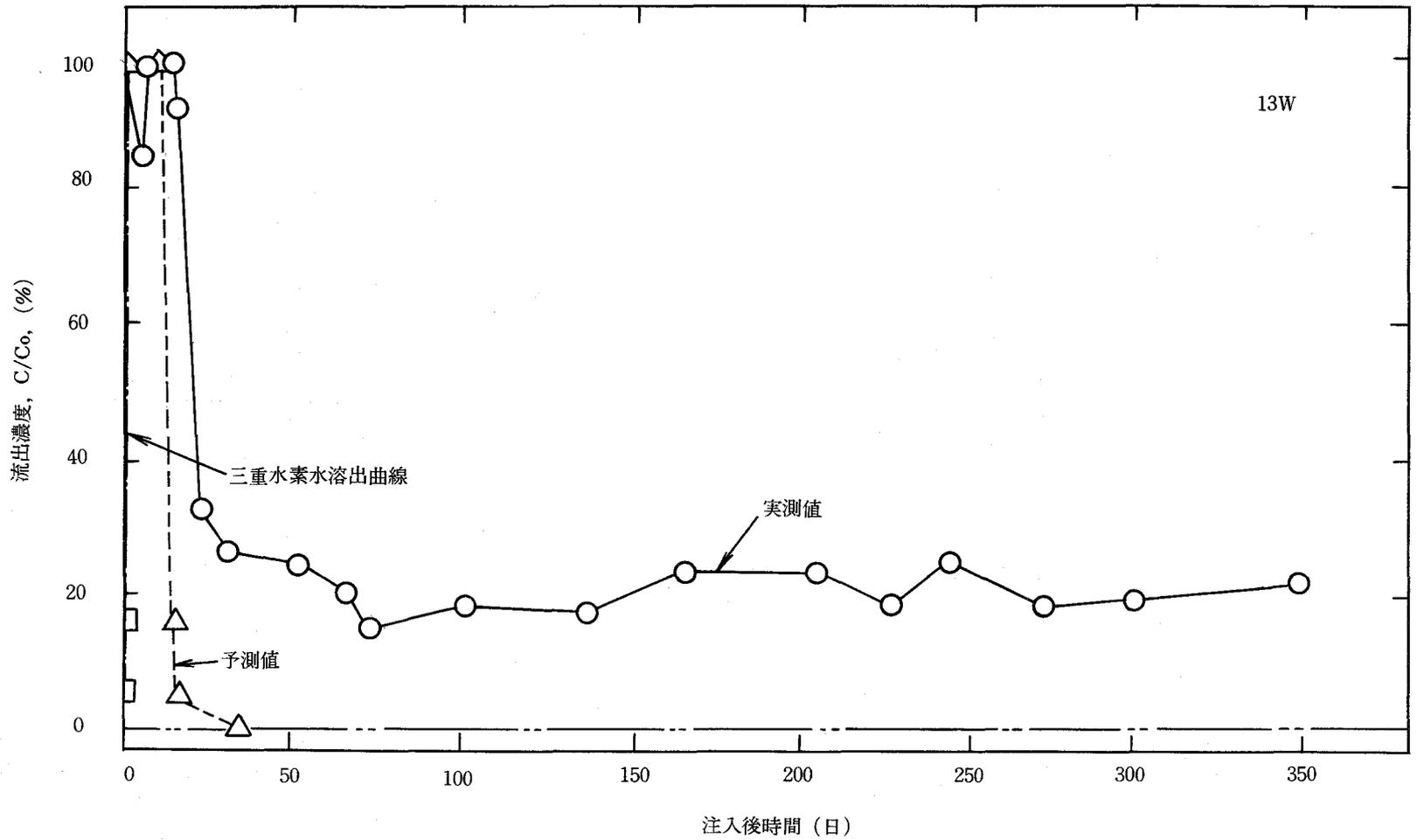


図 - 3.29  $^{89}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (13W)

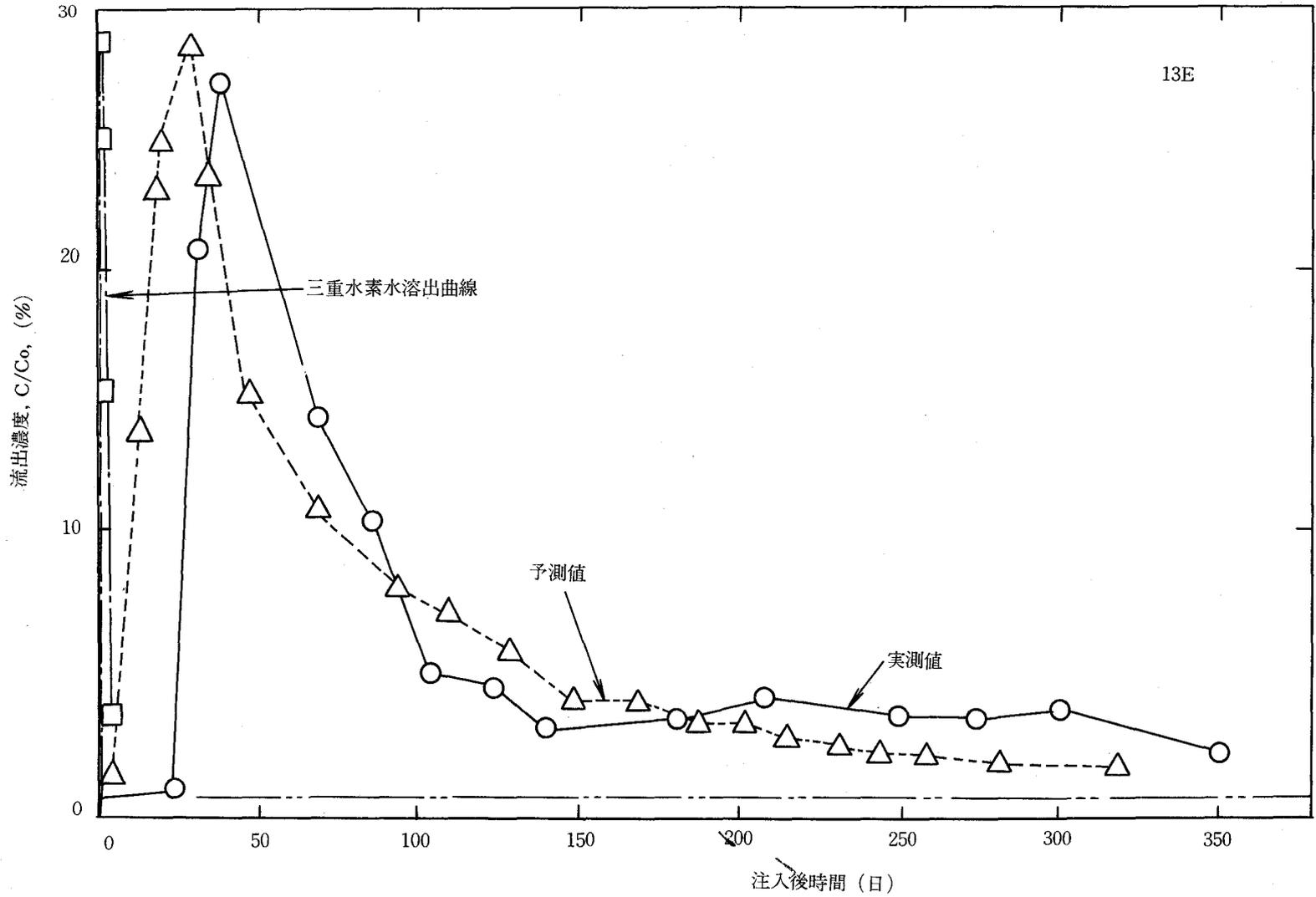


図 - 3.30  $^{90}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (13E)

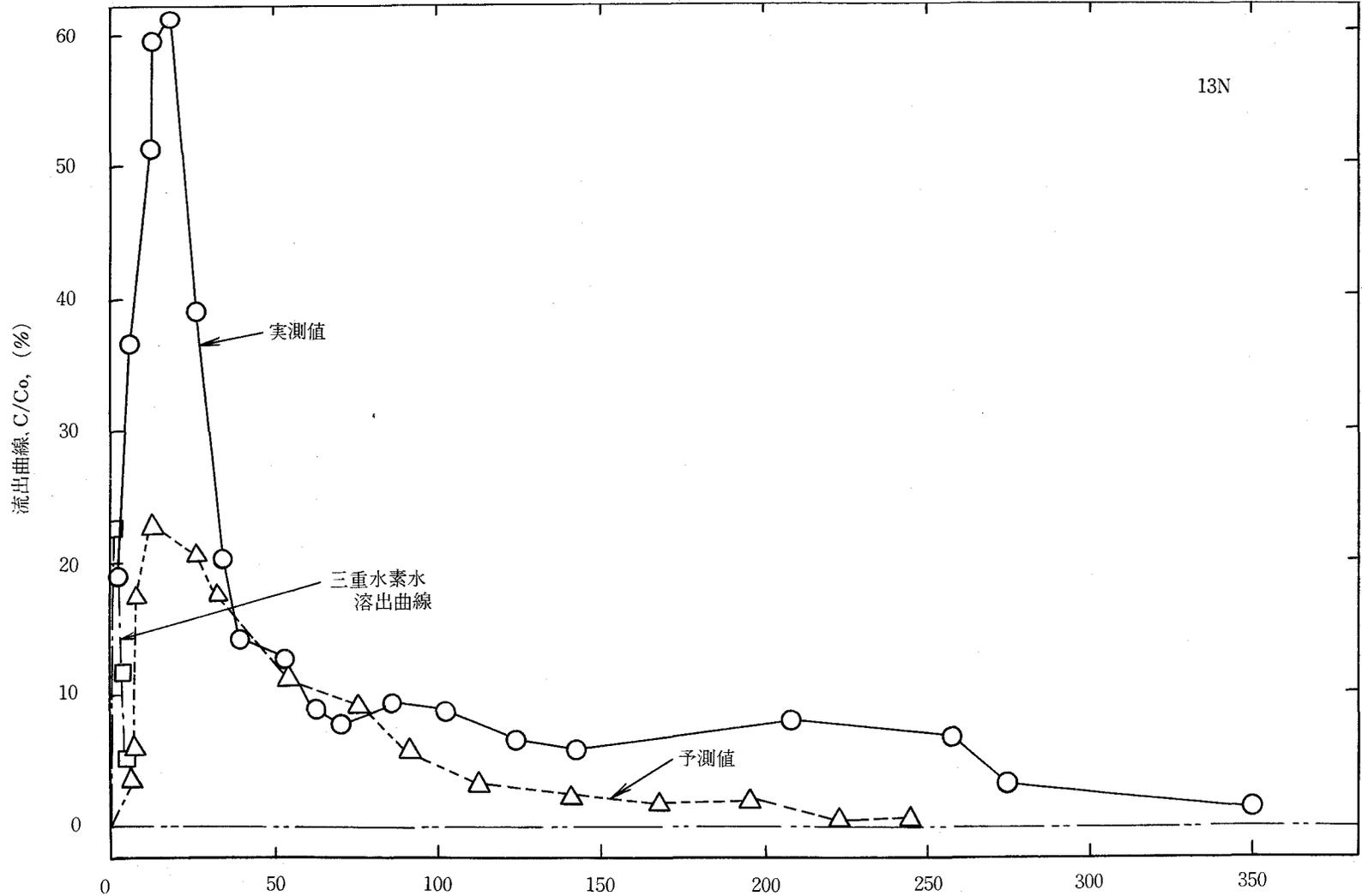


図 - 3.31  $^{90}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (13N)

K<sub>f</sub> を求めるために、<sup>89</sup>Sr を含む注入水を帯水層より採取した砂と接触させて、分配係数 k<sub>d</sub> を求めたところ、1.4.3 ml/g, 1.4.4 ml/g, 15.2 ml/g を得た。また、比重は 2.60 g/cm<sup>3</sup> である。空げき率は土の不攪乱試料が得られないために、測定が困難であった。よく締め固まった砂層の空げき率は、0.25 から 0.40 の値をとるが、これに従って K<sub>f</sub> も 1.15 から 5.8 に変化する。空げき率は直接測定が困難なので、代表的な井戸をえらび、予測値と実測値とが最もよく適合するような K<sub>f</sub> を求め、これを全地層に適用するより他に方法がない。代表的な井戸として 63 S をえらび、K<sub>f</sub> を求めると、K<sub>f</sub> = 5.6 を得た。これは空げき率 f = 0.408 に相当する。もっとも K<sub>f</sub> は一定のものではなく、地層の平均的な値である。交換容量や分配係数の測定結果からみても、地層は物理化学的に均質と見てよく、また比重も一定であるが、空げき率は場所的に変化することが考えられるし、注入水の化学的濃度も表-7 のように時間的に変動している。たとえば注入後、約 150 日の 1960 年 1 月 20 日には、注入水中の主たる陽イオンであるカルシウムとマグネシウムの濃度の和は 11.0 meq/l なのに対し、注入開始後 310 日の 1960 年 6 月 6 日には、12.5 meq/l になっている。この注入水濃度の変化だけで、K<sub>f</sub> は約 13% 変動するはずである。

3-3 節でのべた二井系モデル実験の Tap 2 は、この実験では 63 S に相当する。両方とも注入井と揚水井を結ぶ線上、注入井から約 2/3 の距離にある。表-3.9 に溶出点、最高濃度の到達時間、最高濃度を比較した結果を示した。モデル実験は均質な媒体について行っているから、表-3.9 の比の値の不一致は、野外地層の不均一性を示すものと見てよい。

平均的な K<sub>f</sub> 値、K<sub>f</sub> = 5.6 を用いて他の井戸における <sup>89</sup>Sr の溶出実測値と予測値とを比較してみると、図-3.26 ~ 図-3.31 のようになる。揚水井 100 S (図-3.28) をみると、予測値が平滑な曲線を示すのに対し、観測値の変動がはげしいが、傾向としては両者が良く一致しているといえる。150 日を過ぎた時点で観測値が peak を示すのは、この前後で注入水の化学的濃度が高かったためらしく、63 S の場合にも同様の傾向が観測されている。

13 S (図-3.26) は、予測値と実測値が比較的良好に一致した例である。ことに前半部の peak

表-3.9 2 井戸模型実験と屋外実験との比較

	流出点(日)	比	ピーク到着(日)	比	ピーク濃度(%)	比
模型, Tap 2 流 出 水	3	0.5	5	0.5	4.8	2.4
	6		10		2.0	
野外, 63 S 流 出 水	50	0.83	80	0.47	14.8	1.83
	60		170		8.1	

達時間、peak 濃度はよく適合している。100日以後に実測値が比較的高い値を示すのは、井戸内で採水した部位の上に約6mの水があるが、この一部が peak 到達時に汚染されたい。

13W(図-3・29)も最初の30日は両者がよく一致している。ことにC/C<sub>0</sub>が初期に100に達することは、完全に予測ができています。しかし、それ以後予測値より実測値が高いのは、やはり戸内の水が汚染されたものと思われる。13E(図-3・30)は、予測値が実測値よりも少し早くくる傾向があるが、実験誤差の範囲で良く一致していると云えそうである。ことに、peak を過ぎた後のTailの部分で良い一致が見られる。13Eと注入井との間の地質は、ほぼ全帯水層の平均的な性質を持つものとしてよいであろう。13N(図-3・31)は peak の到達時はよく一致していますが、peak 濃度は実測値が予測値の約3倍となった。この原因は明らかではない。

揚水井100Sと13E、63Sでは、観測値と実測値とがよく一致している。これに対し、13W、13Nでは両者の一致があまり良好ではないが、これは、その井戸のまわりの土の交換容量や空げき率が他の地層の部分と異なることに起因すると思われる。

### 5-5 五井系の実験

放射性廃水の地下処理に最適の注入井-揚水井系は、正方形の四隅に揚水井を置き、その中心に注入井を配置した五井系である。こうすれば、正方形内の地層の持つ交換容量を十分に利用できるし、注入した廃水は正方形の外へ出ることなく、いずれかの揚水井に達するから、揚水井を Monitoring Well に兼用すれば、注入した放射性物質が Monitor されずに所在不明になる可能性も少ない。

新たにφ15cm井戸を五本掘った。一本は注入井に、また他の四本は注入井より東西南北に7.5m離れて掘って揚水井とした。揚水井は北東南西に対応してNEWSと名づける。注入流量は37.9ℓ/min、揚水は各井戸から各9.5ℓ/minで、注入量と揚水量とはbalanceしている。注入装置は前節で使用した図-3・23のものをそのまま使用し、揚水はそれぞれ水中ポンプで行った。実験に先立ち、付録-4に示すような地下水流速測定装置で、各揚水井の地下水自然流速を求めると、N井5.25m/day；E井1.95m/day；W井1.26m/day；S井4.9m/dayであり、地層が均一でないことがよくわかる。

まず、三重水素水を188.5時間注入し、以後も注入-揚水を続けながら、三重水素水の各揚水井への溶出を観測したのが図-3・32である。

188時間三重水素水を注入する間に、427m<sup>3</sup>の水を注入したが、この四角内の空げきの体積は37~87m<sup>3</sup>と推定されるので、注入量は空げきの5~11倍である。しかし、いずれの井戸も、流出濃度はC/C<sub>0</sub>=100%には達しなかった。S井への溶出が最高で、188日後に82%に達したが、W井、N井の順に低下し、E井は最高濃度がC/C<sub>0</sub>値で40%以下であった。この溶出曲線を積分すると、各揚水井へ注入した三重水素水の回収率がわかる。理論的には、各井戸均等に

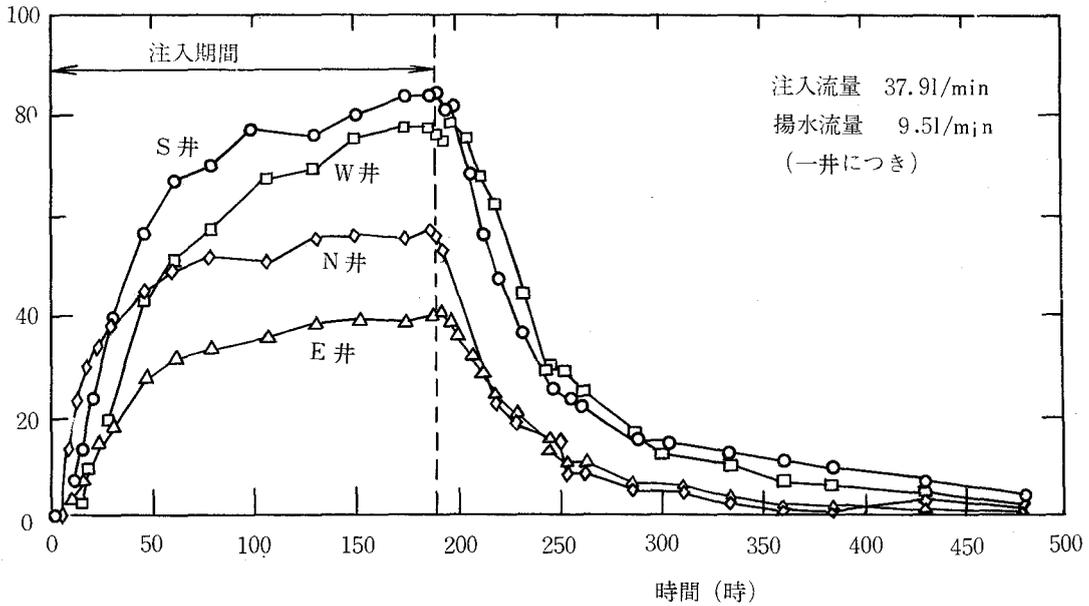


図-3・32 三重水素水の溶出曲線(五井系)

注入量の1/4が出現すべきであるが、表-3・10に示すように、いずれも100%をこえていない。

注入水の水質と、帯水層の水質に少し差があるので、長時間にわたる注入実験の後に、各揚水井中のCl<sup>-</sup>と、総陰イオン濃度から回収率を求めると、同じく表-3・10右欄のようになる。三者の値はほぼ一致しているが、三重水素水注入期間188時間より、全注水期間の方が約1000時間と長いので、Cl<sup>-</sup>ま

表-3・10 注入水の回収率

井戸	回収率		
	三重水	Cl <sup>-</sup>	全陰イオン
N井	60.4	77.4	75.2
E井	46.8	51.0	48.7
W井	93.3	98.1	93.9
S井	98.3	99.5	94.2
平均	74.7	81.5	78.0

は陰イオン濃度より求めた回収率の方が正確と思われる。もし、帯水層をはさむ上下の粘土層が完全に不透水性であり、かつ自然の地下水の流れがなければ、注入した三重水素水は100%揚水井から回収すべきものであるが、実際には80%位にしかならなかった。

表-3・10と図-3・32をみると、やはり帯水層はとても均質とはいえない状態にあることがわかる。この地下水には、図-3・21に示したように、北東から南西への自然流下が見られるが、三重水素水の回収率も、上流側のN井、E井が低く、下流側のS井、W井が高い。これは、注入放射物質が地下水により、正方形の区域から下流側へ押し流されたことを示している。N井で流出点が早

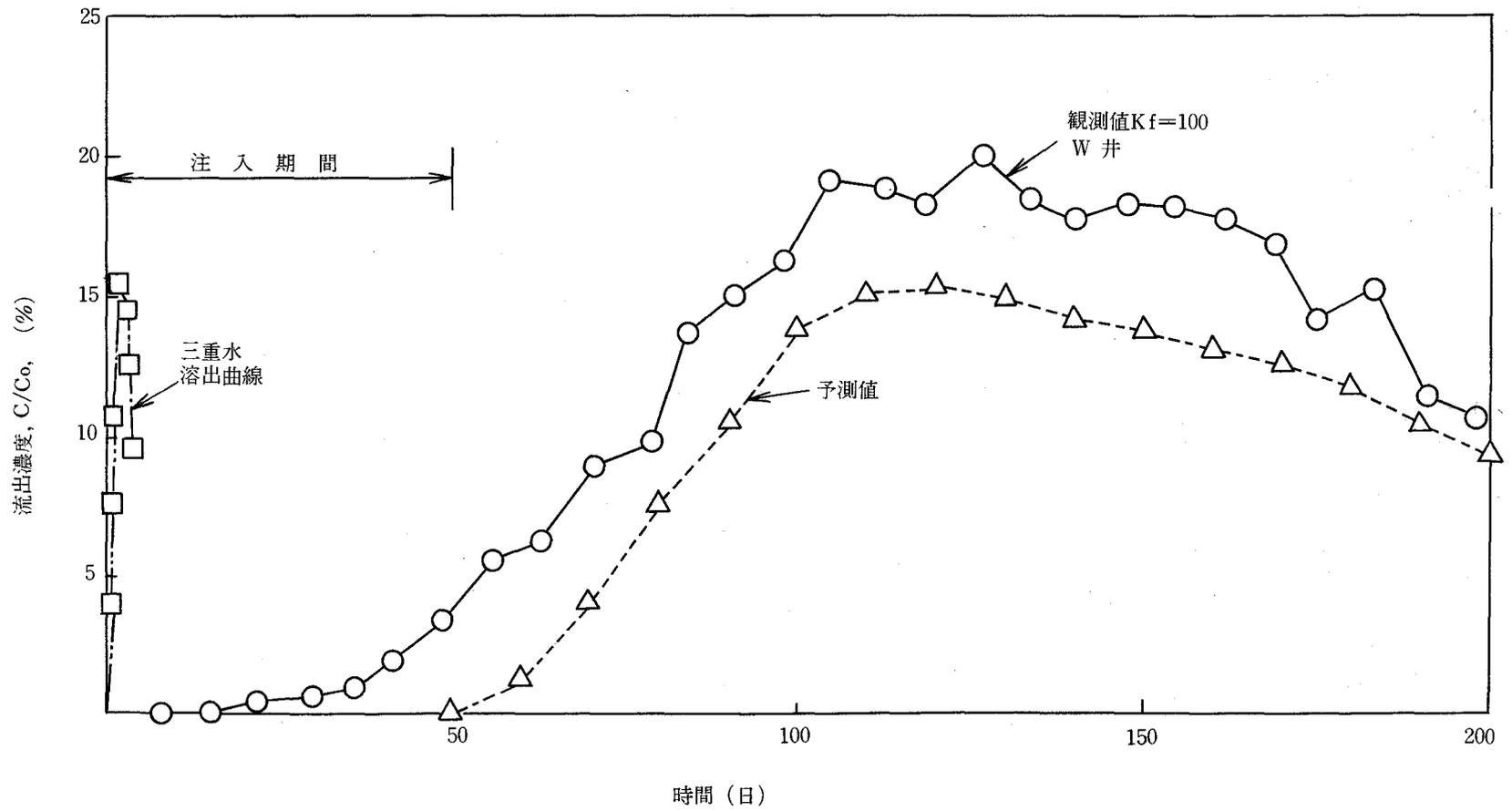


図 - 3.33  $^{89}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (W井)

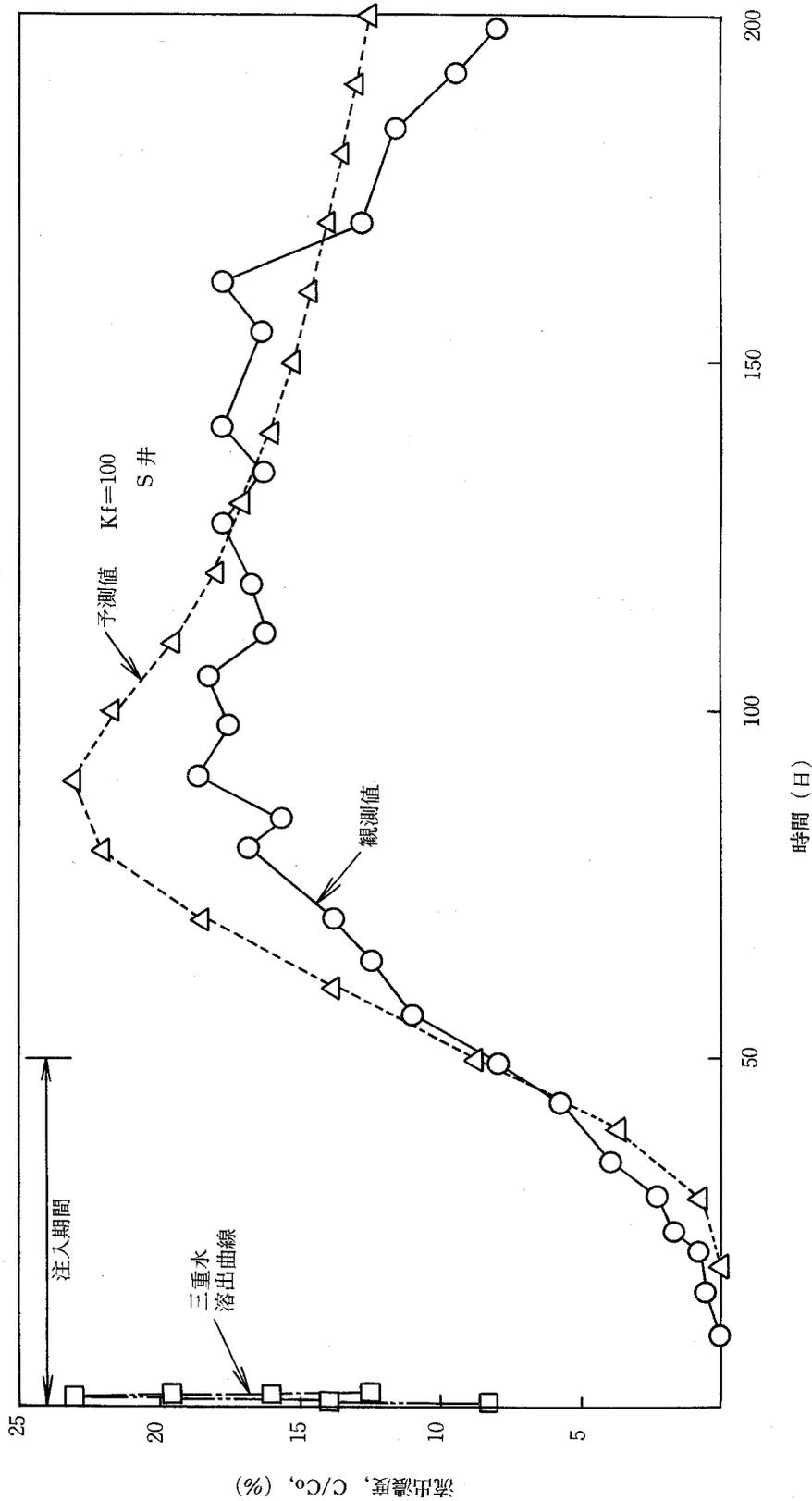


図 - 3.34  $^{89}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (S井)

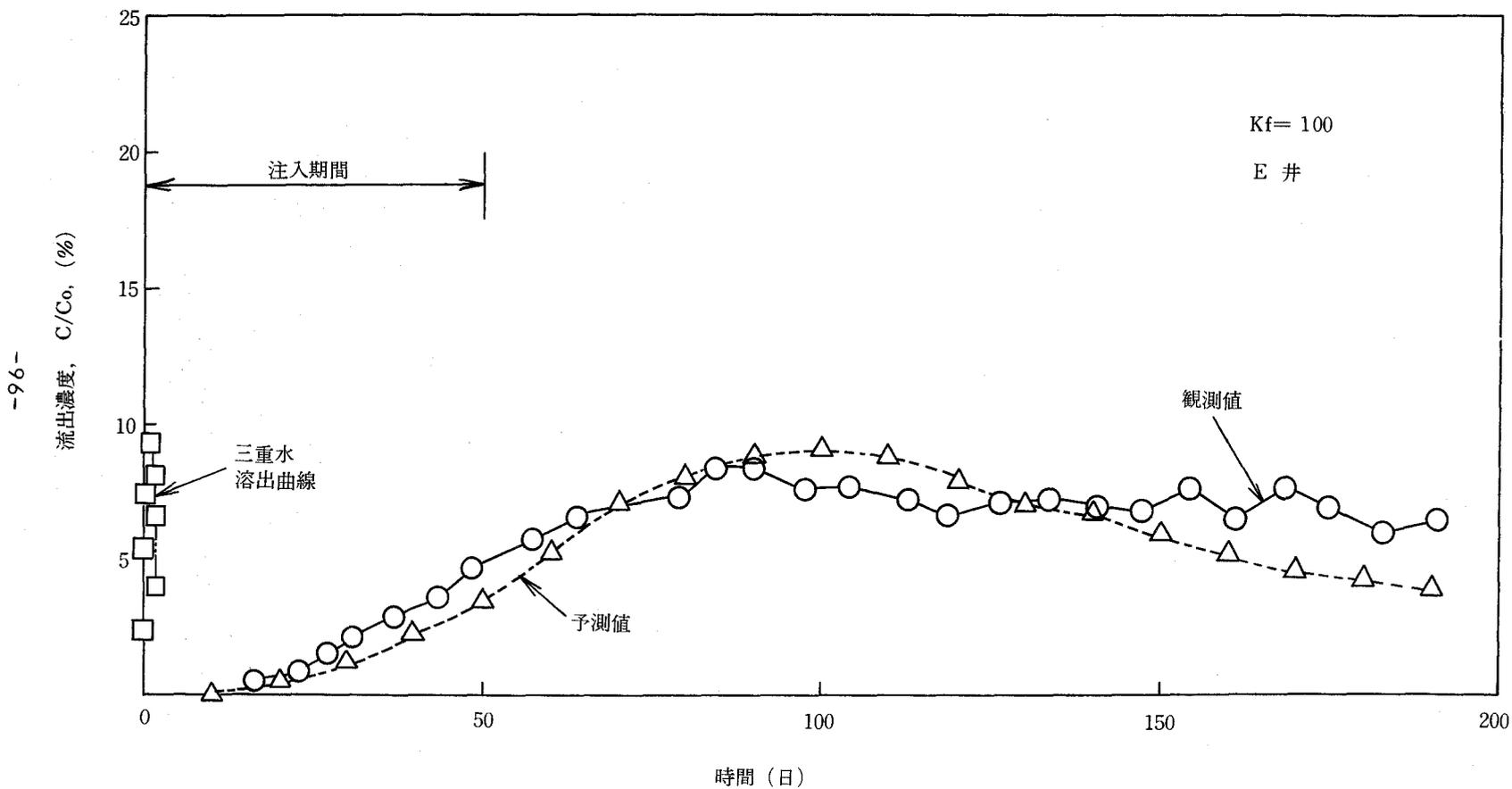


図 - 3.35  $^{88}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (E井)

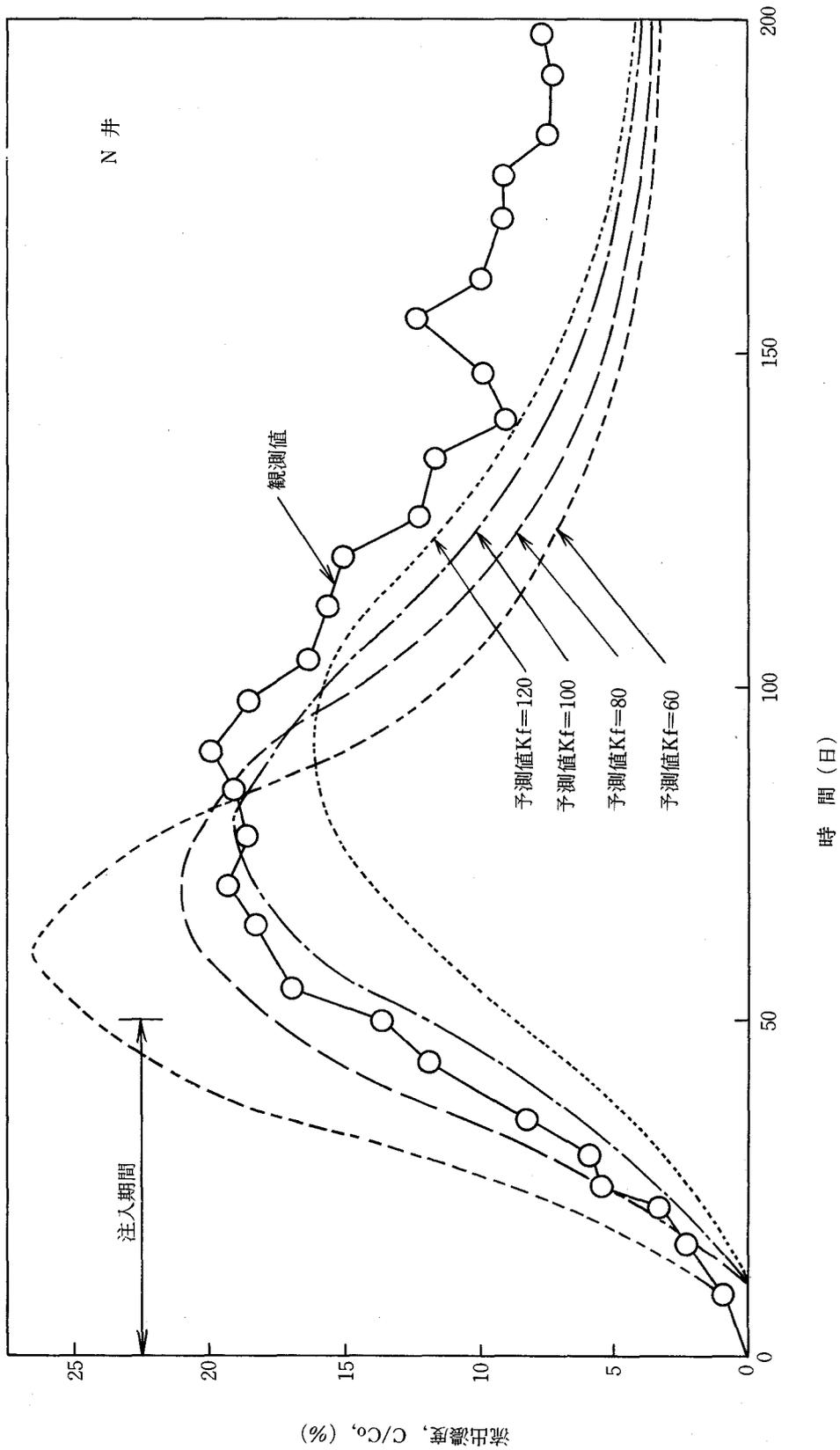


図 - 3.3.6  $^{90}\text{Sr}$  溶出の実測値と予測値 (N井)

く、かつ流出濃度がEよりも高いのは、この方向に透水係数の低い地層が存在するのではないかと思われる。

つぎに、 $^{89}\text{Sr}$ を50日間 $3.75 \ell/\text{min}$ の流量で注入し、それ以後、防火用水の注入と井戸水の揚水を200日続けて、溶出曲線を図-3.33, 3.34, 3.35, 3.36のように求めた。 $K_f$ をこの場合についても知る必要があるが、地層の空げき率がわからないので、図-3.36のようにN井につき、最もよく適合する $K_f$ として、 $K_f = 100$ を定め、これを他の井戸にも適用して溶出曲線を求めた。S井(図-3.34), E井(図-3.35)は、非常に良い一致を示している。これに対し、W井は予測値が観測値より少し低い値となった。しかし、その差も流出濃度で20%程度であり、第二回放射性廃棄物地中処分国際会議でこの成果を発表したところ、複雑な地層に対する予測値としては、非常に精度の高いものであるとの発言があった(9)。

### 3-6 ま と め

本章では、主として第2章で述べた理論を実験結果と比較した。カラムについての実験では、固定床イオン交換塔の溶出曲線に関するThomasやHiester-Vermeulenの理論と比較し、流速の低い、固相と液相間に交換平衡が仮定できる場合は著者の理論が良く適合することを示した。このことは、かなり複雑な流れをする二井系のモデル実験の場合についても成立する。厚さ2.5mの被圧地下水層について、二井系および五井系の野外実験をしたところ、地層はかなり不均質であるにもかかわらず揚水井への放射性核種の溶出は、誤差20%程度で予測でき、実際の地層にも著者の方法は十分適用できることを知った。

### 参 考 文 献

1. Hiester, N.K., and T.Vermeulen, Saturation performance of ion-exchange and adsorption columns, Chem.Eng.Progress, 48, 10 505 (1952)
2. Ogata, A. and R.B.Banks, Dispersion of fluid flow in porous media, Doctoral Thesis, North Western University, (1959)
3. Lau, L., W.J.Kaufman and D.K.Todd, Dispersion of a water tracer in radial laminar flow through homogeneous porous media, Hydraulic Lab. Report, Univ. of Calif., Berkeley

(1960)

4. Hilgard, E.W., Soils, The MacMillan Co., N.Y. (1921)
5. Lyon, T.L., E.O. Fippin and H.O. Buckman, Soils—Their Properties and Management. The MacMillan Co., N.Y. (1919)
6. Kelley, W.P. and S.M.Brown, Replaceable bases of soils. Agricultural Experiment Station Technical Paper 15 Univ. of Calif. Press 1-39 (1924)
7. Orcutt, R.G., W.J. Kaufman and G.Klein, The Movement of Radiostrontium Through Natural Porous Media. San. Eng. Research Lab., Univ. of Calif., Berkeley, (1956)
8. Krone, R.B. Investigation of Travel of Pollution, San. Eng. Research Lab., Univ. of Calif. Berkeley, (1954)
9. 第2回放射性廃棄物地中処分国際会議における De Laguna (米国 Oak Ridge National Laboratory) の討論

## 第 4 章 放射性物質の地下移動に関する工学的研究

### 4-1 概 説

第 2 章で述べた放射性物質の地下移動を地下水の動きと関連づけて研究する方法は、第 3 章において、カラム、二井系模型、および二井系、五井系の野外実験で実用性のあることが証明できた。これをさらに大規模な原子力施設に適用して、工学的にその成果を問いたいわけであるが、わが国は「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」が、放射性物質の地下処分を禁じているので、小規模な実験さえもできない現状である。しかし、原子力施設から漏えいする放射性物質のために地下水が汚染される恐れがあり、日本原子力研究所から調査を委嘱され、東海研究所、大洗研究所の地下水調査を行った。ことに大洗研究所では、高放射性廃棄物貯蔵庫の位置を地下水汚染の立場から選定した。これらの成果を 2、3 節にのべる。また最近、原子力発電所の数が増加するに及んで、ますます放射性廃棄物の処分が重大問題になりつつあり、海洋処分と並んで地中処分が注目されるに至った。このために原子力安全研究協会内に放射性廃棄物処理、処分委員会が設置され、著者も委員の一人として、地下処理の可能性等、工学的問題の解決に参画している。第 4 節は、この委員会の要請に答えて、発電力 30 万 kW の規模の原子力発電所より発生する固形廃棄物の地下処分による環境の放射能汚染と、人類への影響を論じたものである。

### 4-2 日本原子力研究所東海研究所の地下水調査

日本原子力研究所東海研究所は、1号炉(JRR-1)から5号炉(JRR-5)までの5基の研究用原子炉を持ち、また Van der Graaf 加速器、燃料再処理試験工場を持つわが国最大の原子力研究所で、附近には Calder Hall 型発電炉を持つ原子力発電株式会社や、燃料精練をする動力炉開発、核燃料事業団、放射線医学総合研究所東海支所などの関連施設が集まってきている。ここで発生する廃棄物は、廃棄物処理場で処理され、高放射性廃棄物は貯蔵庫で厳重に管理、保管されており、地中処分する計画はない。しかし、昭和 39 年に 2 号原子炉地下室に地下水が浸入して問題になったように、放射性物質による地下水の汚染の危険が指摘されてきた。そこで、第 2 章、第 3 章で述べた知見をもとにして、同所の地下水を放射能的に調査することにした。

#### 4-2-1 日本原子力研究所東海研究所の地質

東海研究所の敷地面積は、 $2.67 \times 10^6$

$m^2$ で(図-4・1)，隣接する日本原子力発電所の敷地を合わせると $3 \times 10^6 m^2$ 以上に及んでいる。これまで構内各地域にわたって行なわれた地層柱状図，並びに動力炉開発，核燃料事業団の地質報告書等から，構内およびこの周辺における地質はほぼ明瞭になっている。すなわち，構内並びにその周辺の地層は地表より数十米(略30m)下に細粒砂岩，シルト岩，頁岩よりなる第三紀層があり，この上に10m程度の洪積砂礫が堆積し，さらにその上を沖積層が覆っている。

沖積層は粘土，シルトと砂層の互層よりなり，砂層は時として礫を含む。この層は1号原子炉(JRR-1)東方より3号原子炉(JRR-3)の南にかけて深さ10m位の谷を形成しており，さらにこの谷および地表面を砂が覆っている。ごく表層には数十厘の厚さの腐蝕土の存在する所もある(図-4・2)。このためJRR-1からJRR-3付近まで地下水の早く流動するいわゆる水みちが存在しており，海岸付近は海浸により20m程度の断崖をなし，その上に砂丘が発達している。

#### 4-2-2 地下水の流れ

地下水の全体的な流向などの調査には，まず詳細な水位等高線図を作成することが必要である。結果を図-4・3に示す。

原研構内では，原子炉等の大型施設が設置されるたびにボーリングが行われ水位測定がなされていたが，これらの観測は，同時観測ではなく，時期的には延べ数年にわたっているので，本等高線図は厳密に言えば正確なものではない。また，これらボーリングは，初めから本旨のような目的で設けられたものでないので，位置的に偏ったり，欠けたりしている。しかしながら構内地下水の全体的な傾向はおおよそ推定できる。すなわち，本等高線図によれば，ナ-0より，ナ-30に達するところに水みち(地下河川)があって，丁度ヶ線のところが分水線をなしており，これより西(陸側)の地下水はこの水みちに集まり，ヶ線より東(海)側の地下水は海岸側に流出していることがわかる。なお，この付近の地層の縦断面図を図-4・2に示す。

地下水の流速は透水係数が分かれば，Darcyの法則により計算によって概略求めることができる。地下水が等方均一な砂層中を進むときには，等水位線に直角に流動するものと考えて，この法則で地下水の流速，流向を求めようが，実際的には地層はそれほど均一単純ではないので，厳密にはDarcy則を現地に適用すると，あるていどの誤差はまぬがれない。ただ構内及び同周辺における帯水層は，比較的単純であるので，均一層とみて考察しても恐らく定性的にはさしたる誤差はないと考えらる。かくして図-4・4のような地下水流速図が求められる。この場合，地層の透水係数は，現地の砂につき測定して $7.92 \times 10^{-2} cm/sec$ であることを知った。

この図表によれば，JRR-2，JRR-3，JRR-4の地下水は極めて流速が早く，JRR-4付近では，1日10mを超えているところもある。なお，このような等水位図と透水係数より推定した流速は，Point Dilution Methodなどの方法で地下水の流速，流向を実測してさらに検討し

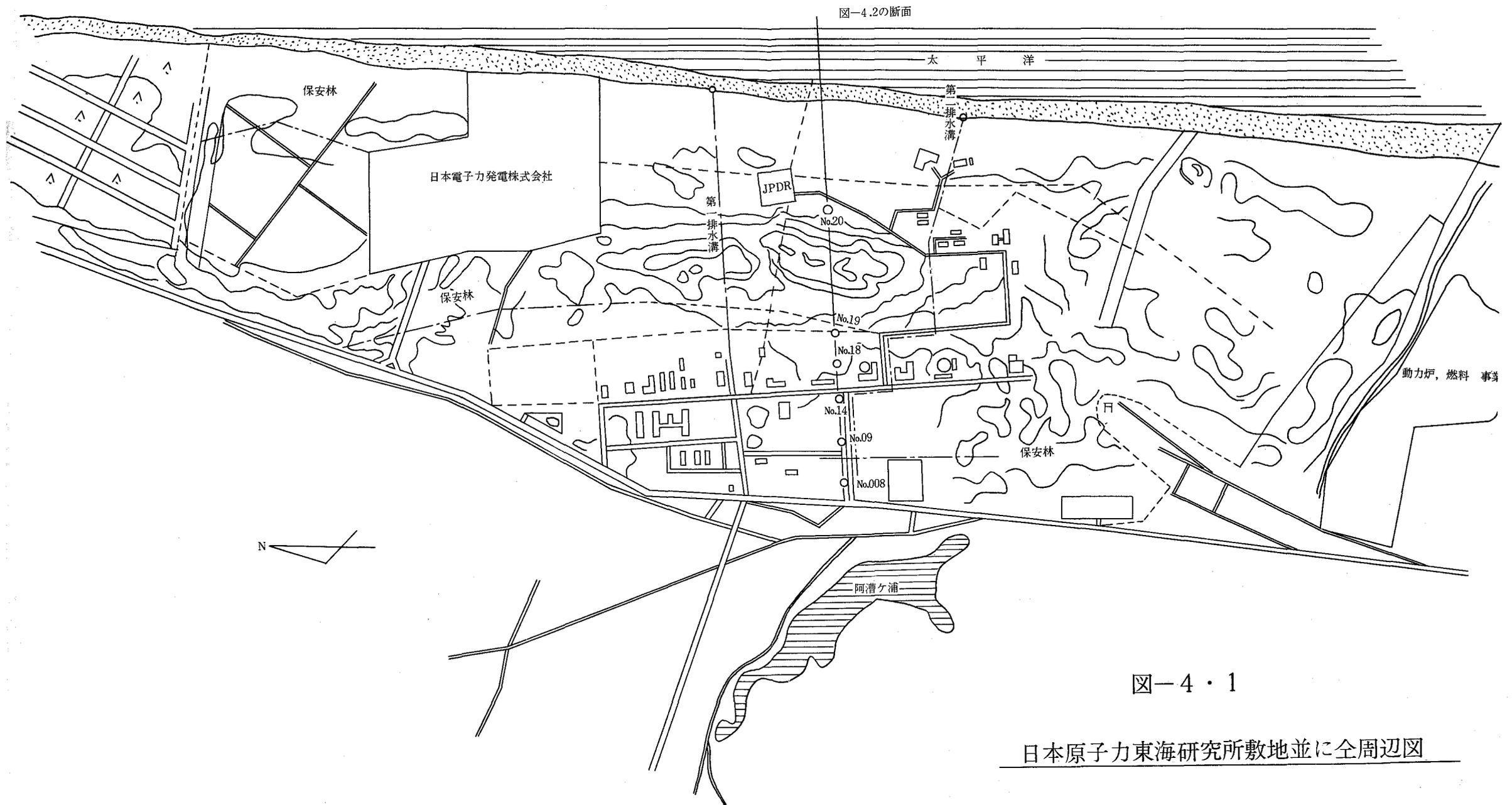


図-4・1

日本原子力東海研究所敷地並に全周辺図

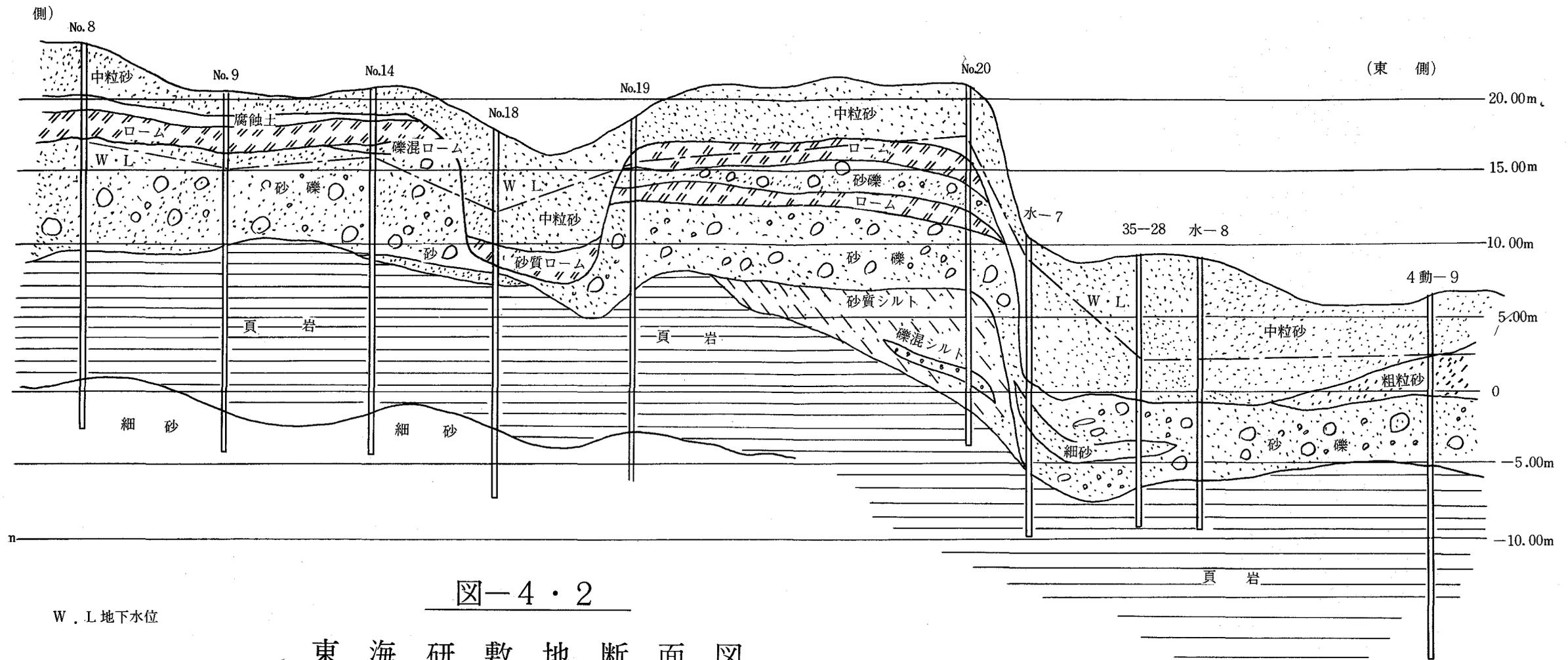


図-4・2

東海研敷地断面図

JRR-2 (No.18)位置を中心に東西に縦断

縮尺横1/4000 縦1/300

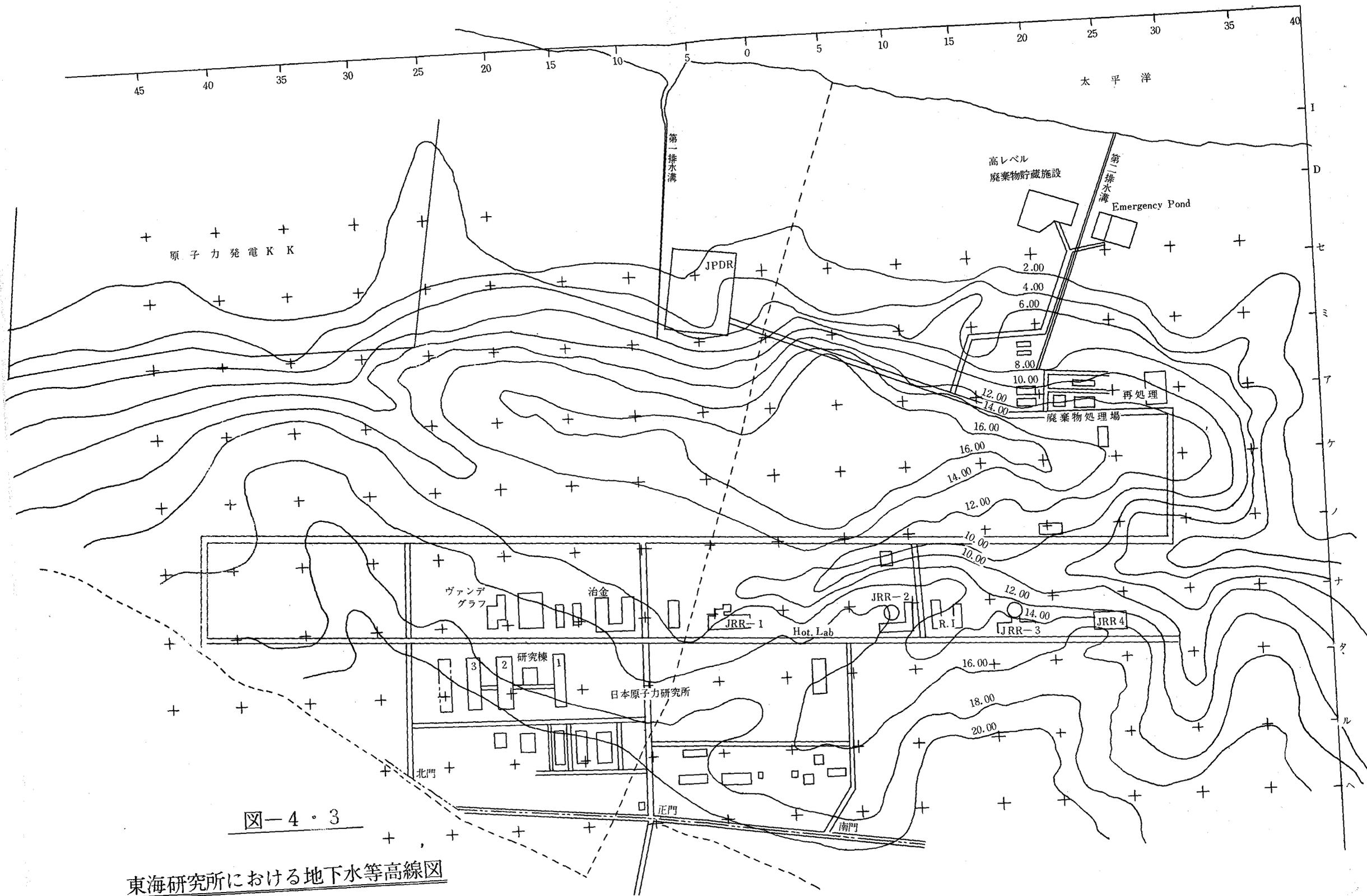


図-4・3

東海研究所における地下水等高線図

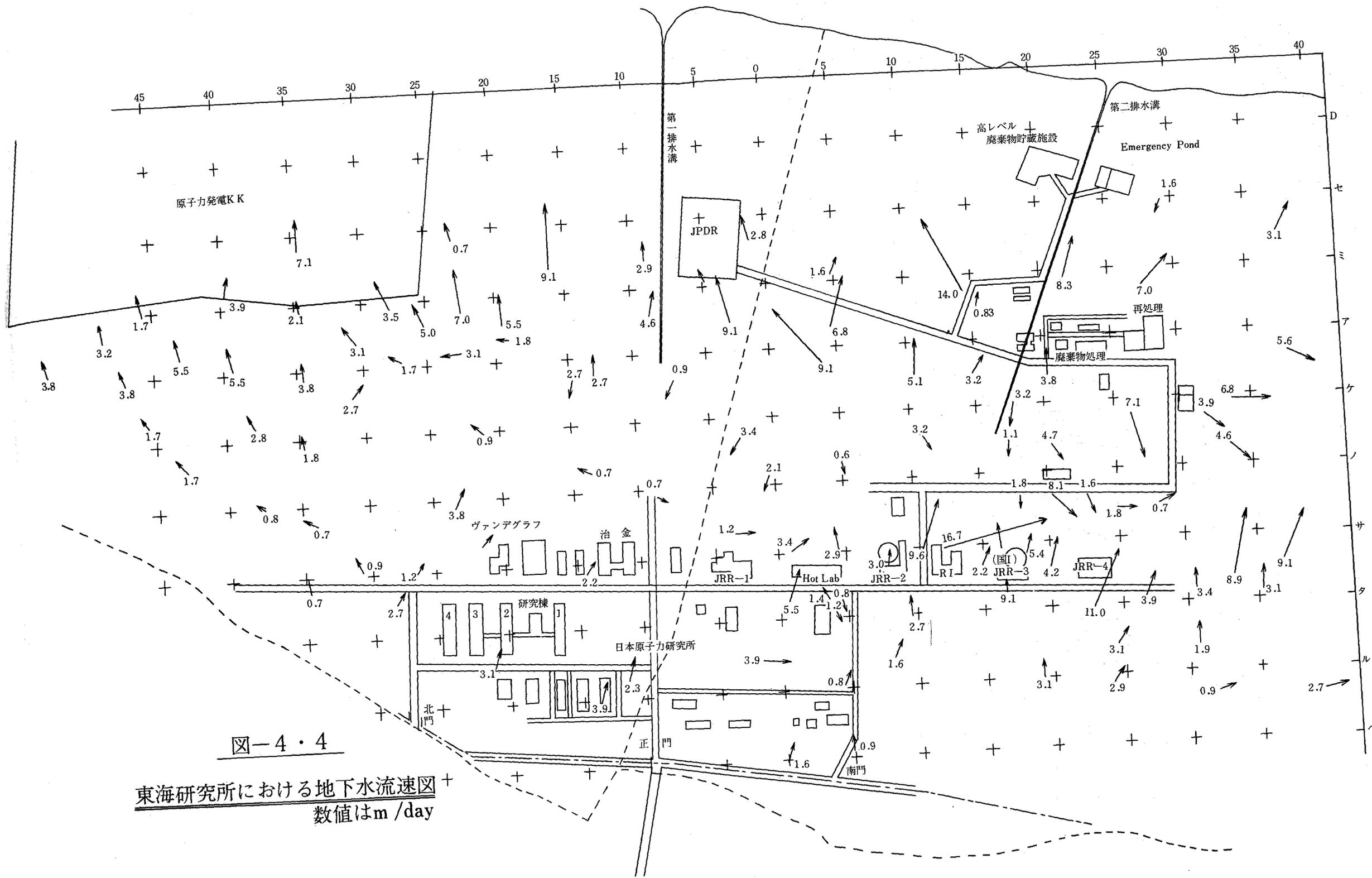
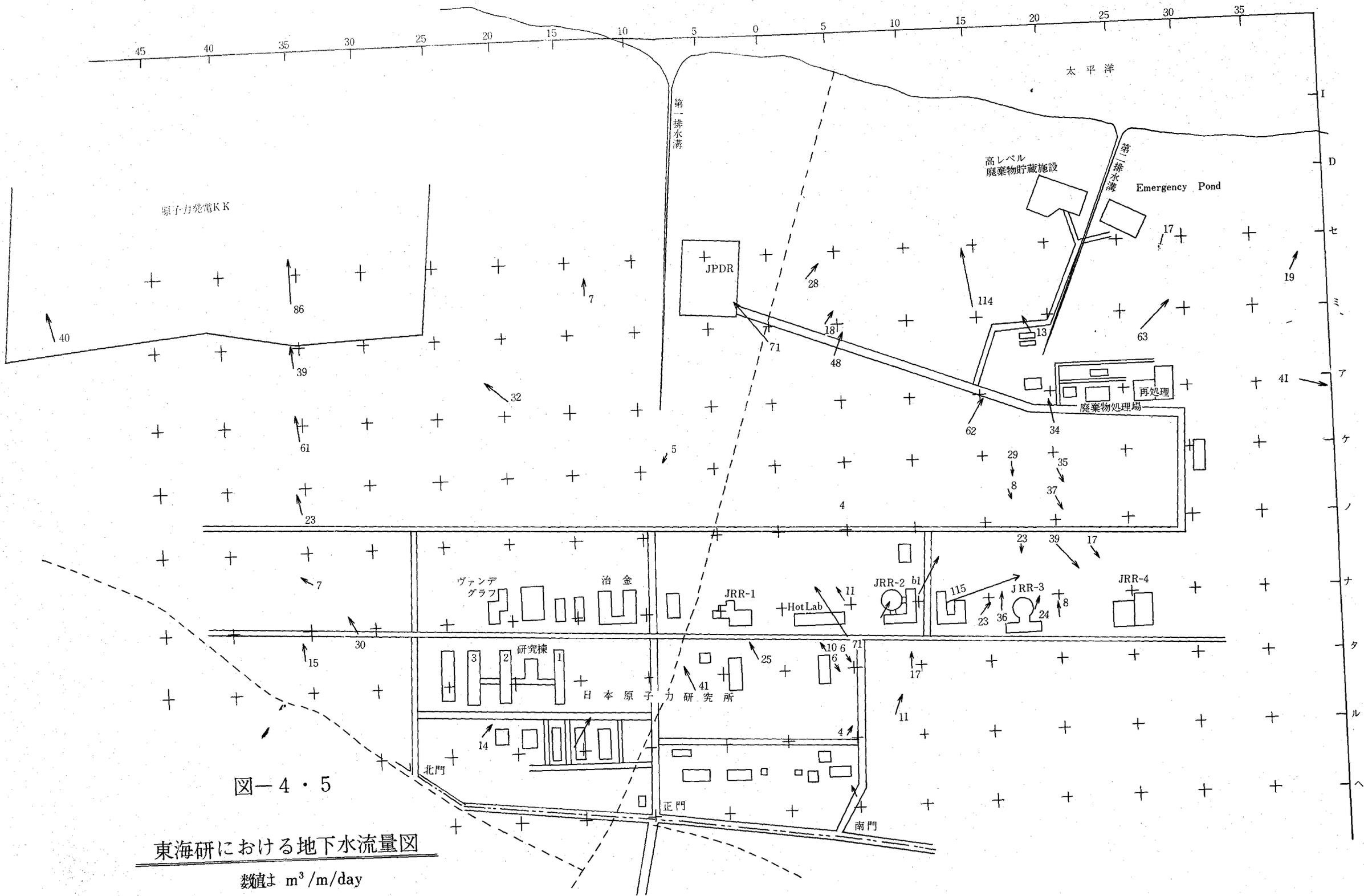


図-4・4  
東海研究所における地下水流速図  
数値はm/day



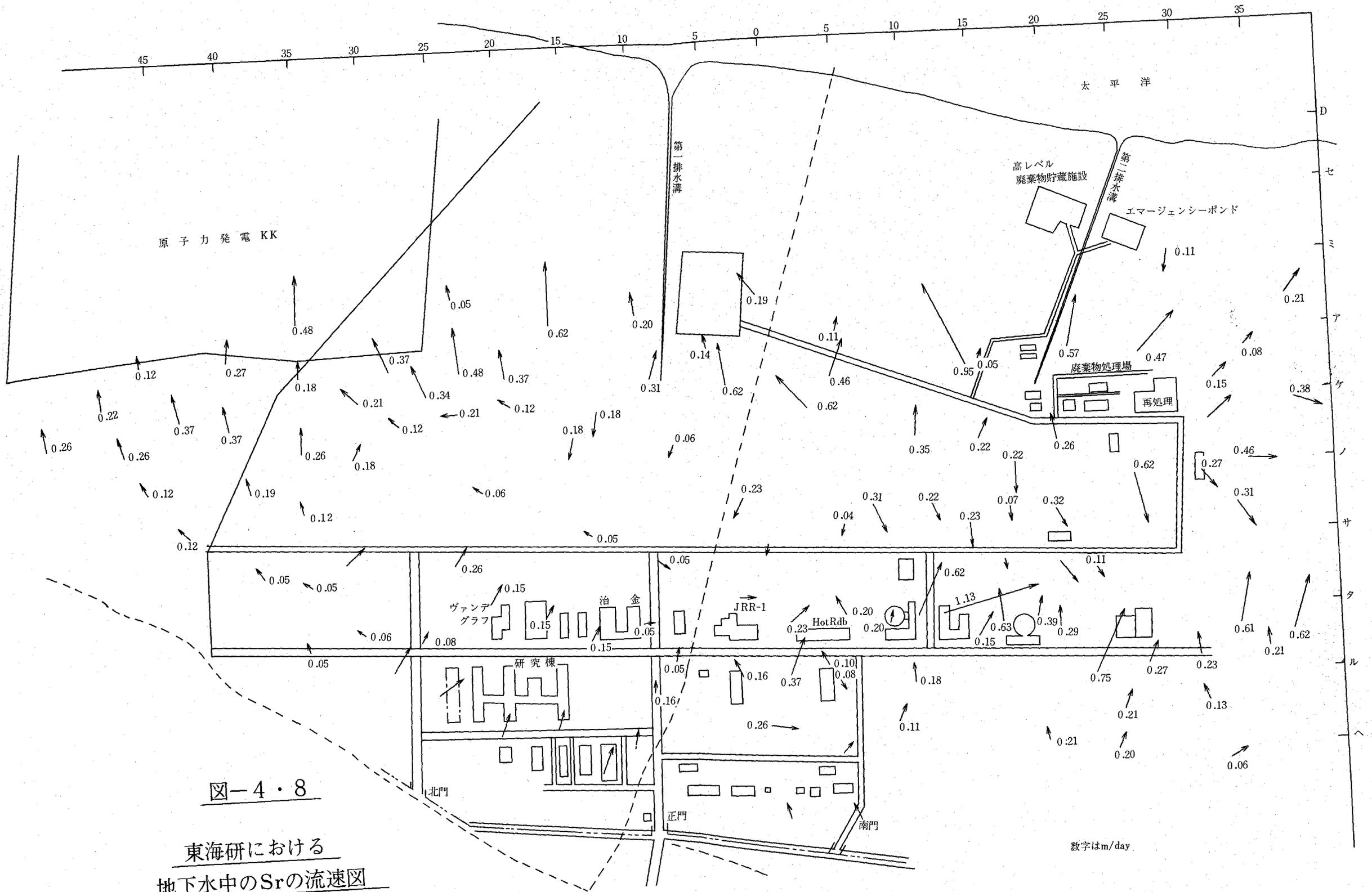


図-4・8  
東海研における  
地下水中のSrの流速図

てみる必要がある。

昭和31年8月以降、何回かにわたって実施されてきた地質調査ボーリング工事報告書によれば、敷地内滞水層の厚さは部分的に与えられているので、局地的な地下水流量（流れるに平行な1m巾当り）はこれより求めることができる。図-4・5がこれを示すが、滞水層の厚さは敷地全体にわたって観測されたものではないので、本流量推定も限られた一部分について求めたのみである。

本図表より明らかなごとく、JRR-1~3付近に存在する水みちは、流速はさほど大きなものでないけれども、流量自体はかなり大きい。

4-2-3 地下水の放射能汚染に関する調査      放射性の廃液等が地下に浸入して、地下水を放射能で汚染させるような場合を想定すれば、これら放射性物質の地下における挙動を予め調べておくことは甚だ重要なことである。

ところで、第2章、第3章で述べたような地下水の拡散実験をするには、かなりの困難があった。第3章の野外実験では、地下水の揚水をして流速を早めているにもかかわらず、一つの実験に一年余を費している。自然に流れる地下水の流速は、透水係数によってもちがうが、本研究の大部分の土地は10 cm/day程度と推定されたために、30mの距離の拡散を調べるだけで一ケ年を要する。観測に要する労力などを考えると、実施はとてできなかつた。また放射性物質が万一地下に漏えいした場合を想定して調査を進めるわけであるが、漏出の可能性のある地点が明らかではないから、拡散実験はあまり意味を持たなくなる。そこで、地下水の流速 $v$ と、核種Aの地下での移動速度 $v_A$ とは

$$\frac{v}{v_A} = 1 + \frac{1-f}{f} \rho k_d \quad (4.1)$$

と与えられるところから、地下水の流速から平均的な放射性物質の地下移動速度を求めることにした。研究する対照として $^{90}\text{Sr}$ をとり上げ、現地で空げき率 $f$ 、比重 $\rho$ 、および分配係数 $k_d$ を求めた。

#### (1) 空げき率

試料は図-4・6に示す敷地内4ヶ所から採取した。砂の表面約1m四方をできるかぎり水平にけずり取った後、半球形に砂を掘り出し、掘り出した砂は残らずビーカーに採取し、乾燥器で105°Cで24時間乾燥させ重量を測定した。また取り出した砂の体積を知るために、掘り出した砂穴に豊浦標準砂を、上面がもとの水平面に等しくなるまでつめ、それに要した標準砂の体積を測定した。豊浦標準砂は粒径が比較的均等でよく流動し、つきかためてもあまり体積が変化しない性質をもつので、このように土の凹みの体積を測定するには便利である。砂の比重は $2.59 \text{ g/cm}^3$ と測定されているので、これを用いて

$$\text{空隙率は} \quad 1 - \frac{\text{砂の質量} \times \text{比重}}{\text{砂の体積}}$$

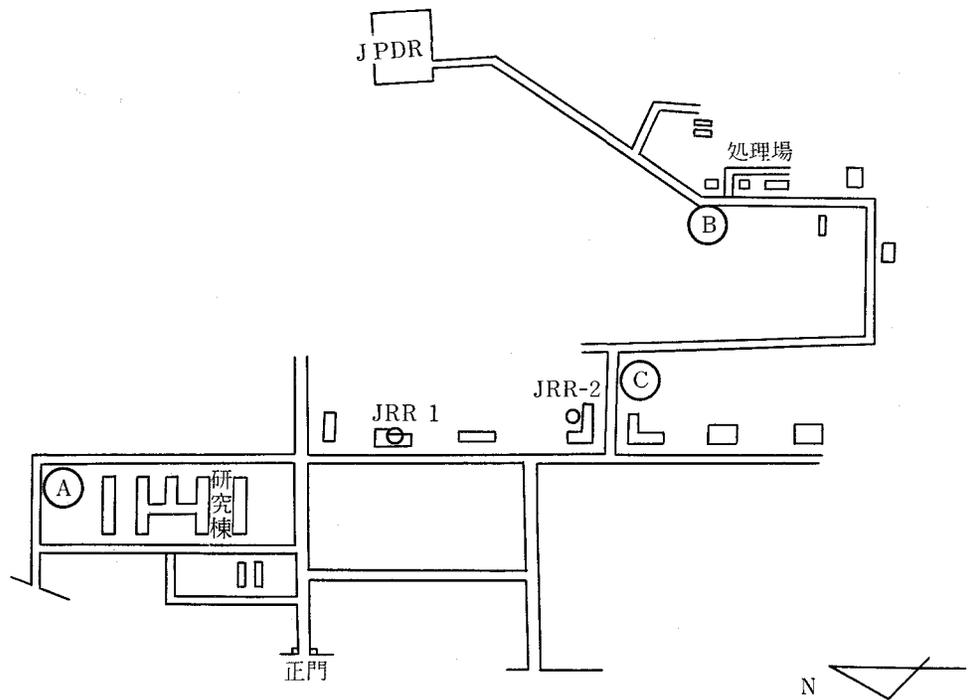


図 - 4・6 構内試料採取位置

により求めることができる。

試料を所内3ヶ所のA,B,C地点より採取して測定した結果は表-4・1の通りである。

すなわち空げき率は、38.0~42.0の範囲に変化しているが、ここではその平均値をとって40.8%を構内砂層の値とした。

表-4・1 東海研究所地層の空げき率

採取地点	空 げ き 率	
A	40.5	38.0
B	41.2	41.4
C	42.0	41.5

## (2) 交換容量

土壌のイオン交換容量は人工的なイオン交換樹脂と異り、交換するイオンの種類に大きく左右される。交換にあずかるイオンとしては、calcium を用いるのが第2章の理論よりみて最も妥当であると考えられるが、ここでは土壌学の方面で標準化されている酢酸アンモニウム法を用いることにした。砂A, B, Cにつき交換容量を測定した結果は、次表に示すが、構内全体にわたり、ほぼ一様である。

一方、この値は動力炉開発、核燃料事業団地点の中粒砂の交換容量  $0.006 \text{ meq/g}$ 、および粗粒砂の交換容量  $0.009 \text{ meq/g}$ 、 $0.011 \text{ meq/g}$  と比較的よく一致している。

表-4.2 砂の交換容量

採取地点	交換容量
A	0.0069
B	0.0071
C	0.0070
平均	0.0070

(3) 砂の分配係数の測定

所内より採取した砂でカラムを作り、同採取地下水に  $^{90}\text{Sr}$  を加えたものを流下させ、土に吸着された  $^{90}\text{Sr}$  とカルシウムの量を次の装置を使用して測定し、次式によって求める。

$$K_{\text{Sr}-\text{Ca}} = \frac{\text{土中の Sr 濃度}}{\text{水中の Sr 濃度}} \times \frac{\text{水中の Ca 濃度}}{\text{土中の Ca 濃度}}$$

$$k_d = \frac{\text{土中の Sr 濃度}}{\text{水中の Sr 濃度}}$$

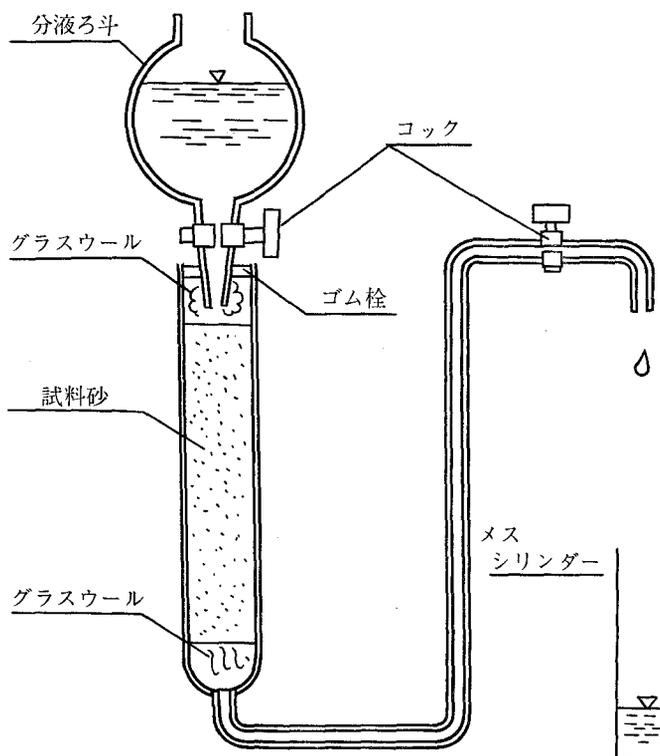


図-4.7 分配係数の測定装置

1. 図-4・7のごとく10gの試料砂を用いてカラムを作り、これに600cpm/mlの強さで<sup>90</sup>Srを加えた地下水を、流出水の放射能濃度が流入水のそれに等しくなるまで通す。
2. 100mlの蒸留水をカラムに通水して砂を洗滌する。
3. 中性の0.1N塩化ナトリウムをカラムに通水し、流出水を10mlずつ集めて、その1mlで<sup>90</sup>Srの濃度を判定し、残りでCa濃度をEDTA法により求める。
4. 3より吸着されたCaの量を求める。
5. 3より吸着された<sup>90</sup>Srの量を求める。

地下水の化学試験を行ったところ、Ca濃度22.1ppm、Mg濃度18.5ppm、Na濃度26.0ppm (as CaCO<sub>3</sub>)であり、また10mlずつ流出水を集めてその放射能を求めたところ、次表のごとく<sup>90</sup>Srは砂に5645.0cpm/10g吸着されており、一方Calciumの吸着量は、流出水全量200mlの平均で90ppm (as CaCO<sub>3</sub>)で、分配係数k<sub>d</sub>は9.41ml/gであった。

表-4.3 カラム実験における<sup>90</sup>Sr溶出量

流出水番号	<sup>90</sup> Sr濃度 (cpm/ml)	流出水番号	<sup>90</sup> Sr濃度 (cpm/ml)
1	2457	11	47
2	1076	12	49
3	513	13	53
4	276	14	33
5	219	15	56
6	189	16	75
7	189	17	42
8	125	18	15
9	140	19	20
10	56	20	5

計 5645

$$k_d = \frac{q_{Sr}}{C_{Sr}} = \frac{5645 \text{ cpm/g}}{600 \text{ cpm/ml}} = 9.41 \text{ ml/g}$$

この結果、もし<sup>90</sup>Srが地下水に混入するような場合、地下水におけるSrの平均的な移動速度は、 $v_{Sr} = \frac{v}{14.7}$ となる。つまりSrは地下水の断面平均流速(前出)の約1/15の速度で移動することがわかる。このようにして構内における地下水の平均流速図(図-4・4)から<sup>90</sup>Srの構内移動速度を求めて図示したものが図-4・8である。

すなわちこれによると、JRR-1~3付近における<sup>90</sup>Srの移動速度はかなり早く、従って放射性物質の漏洩等に対しては十分注意しなければならない。なお<sup>90</sup>Srのほか<sup>137</sup>Cs等のように有害な核

種の移動速度については、その分配係数  $k_d$  を測定することにより、前同様にして地下水との平均流速比から求めることができる。

以上のように、東海研究所の構内周辺における地下水調査をしたが、建設当初から本格的、組織的に地層の調査が行なわれていないので、いくつかの不明点や問題点が残っている。しかし全般的な同研究所の地下水放射能汚染の場合の動向は明らかにしたと思われる。

#### 4-3 日本原子力研究所大洗研究所の地下水調査

4-3-1 緒言 原子力研究所大洗研究所の建設に当り、高放射性廃棄物の貯蔵場の位置を撰定する必要が生じた。本施設は放射能の高い、主として固形の廃棄物を安全に貯蔵するためのもので、その性格上敷地内のあまり利用効率の高い場所に置く必要はないが、万一貯蔵する放射性物質が地下に漏洩した場合を考えてその位置を定めねばならない。このために東海研究所の場合と同じく敷地内主要部分の地下水流動調査をしてその流速、流向を知るとともに、地層の物理化学的性質を測定して、放射性核種の移動方向、距離を求めようとした。

4-3-2 地下水の流動状態 放射性核種の地下での移動状態を知るには、まず地下水の流動状態を知ることが必要である。大洗研究所敷地はいわゆる常総台地の北縁に位置し、頁岩の上に約10～50 mの厚さで粘土、ローム、砂、砂礫よりなる洪積層が堆積しており、この堆積層は海側に約10度傾斜して東側の海岸で波浪により急角度に侵蝕されている。一方西側も潤沼とよばれる塩水湖より限られて、台地は丁度北方に半島状に伸びた形となっている。地下水は洪積層の中に存在する砂層、砂礫層を流れており、下部は一部被圧されている所もある。しかし放射性物質を内蔵する施設は主として地表に作られるので、地下水の汚染も最も地表に近い表層地下水についてのみ調査した。敷地中央には小さな沢が南北に発達し、谷の南端には農業用溜池があって、谷底は水田耕作がなされていた。また谷の中には小川があり、谷間への湧水を集めて北方の潤沼に流入している。透水係数が  $10^{-1} \sim 10^{-2}$  cm/sec とかなり高い地層上にこのように水田や溜池が存在するのは不可解であるが、水田は底を粘土で保護してあること、また溜池はその底面に腐植土が集積して保水性が良いためと考えられる。敷地内の地下水はほぼ中央の小川に向かって集る傾向があり、海岸地帯は海に向かって流れていることが推定できたので、まずその動きを知りうるように、観測井を谷の中および谷に垂直に東西に二列、海岸線に沿って南北に一列、また海岸寄りの地下水の流動状態を見るために海岸寄りに短かく一列と、合計23個の観測井を図-4・9のごとく掘削した。井戸は直径  $3\frac{1}{2}$ " の鉄管が用いられ、底部は滞水層の下部に達し、8 m～31 mの長さを持っている。また井戸の滞水層に接するところはストレーナーを切っている。くわしくは文献(1)を参照されたい。地下水の流速、流向の推定方法として、Darcy の法則と、Point Dilution 法を適用した。Darcy の法則によれば、地下水の流れは等水位線に垂直であり、



図 - 4.9 大洗研究所の観測井と地下水等水位線

断面平均流速（流量を断面積で割ったもの）を $\bar{v}$ とすると、

$$\bar{v} = -k \frac{dh}{dx} = ki \quad (4.2)$$

で与えられる。ここに $k$ は透水係数、 $\frac{dh}{dx} = |i|$ は動水勾配である。透水係数は前出の報告書(1)に、各観測井について降水頭法で測定された値が報告されており、等水位線は昭和41年8月に地下水位の同時測定をして求めた図が掲載されているので、それを利用した。敷地内の大部分の地下水は、敷地中央を北から南に走る谷に向かって流れ、ここで一部は表流水となって滷沼に流入していることがわかる。しかし海岸寄りには地下水が海に直接流入している地域も存在する。ところで、Darcyの法則は均一等方性の地層に適用できる理論であり、実際に大洗地区の地層がこの法則を適用できるほど均一であるかどうかを確かめる必要がある。そこで第2の方法として、付録-4に示すPoint Dilution法で地下水の流速を求めることにした。この方法により求めた各観測井の地下水流速を、Darcyの法則より求めた地下水の流速と対比させて表-4.4に示す。二、三の井戸を除いて、両者は比較的良好一致している。流速に帯水層の厚さを掛けて、地下水の流量を求めたのが図-4.10である。

表-4.4 Darcyの法則と、Point Dilution法で求めた地下水流速の比較

井戸番号	地下水流速 (cm/day)	
	Darcyの法則	Point Dilution法
A	5.5	5.1
B	42.8	56.0
D	100.9	108
E	4.0	48
G	114.0	89.7
H	23	16.1
I	41	119
J	12	13.7
K	5.9	58.7
L	1.0	14.9

#### 4-3-3 放射性核種の移動速度

放射性核種の地下での移動速度を知るには、式の諸数値

を求める必要がある。空げき率、比重に関しては、前記報告書(1)に各観測井をさく井した際に実測した値が報告されているので、それを使用する。 $k_d$ は、対照とする核種につき、個々に求める必要がある。多くの放射性核種のすべてについて $k_d$ を求めることは困難であるから、ここでは $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ をとり上げ、カラム法により $k_d$ を求めることにした。観測井から採水した地下水に放射性核種Aを混入し、その水中濃度 $C_A$ を測定する。つぎに現場より採取した試料土10gを用いてカラ

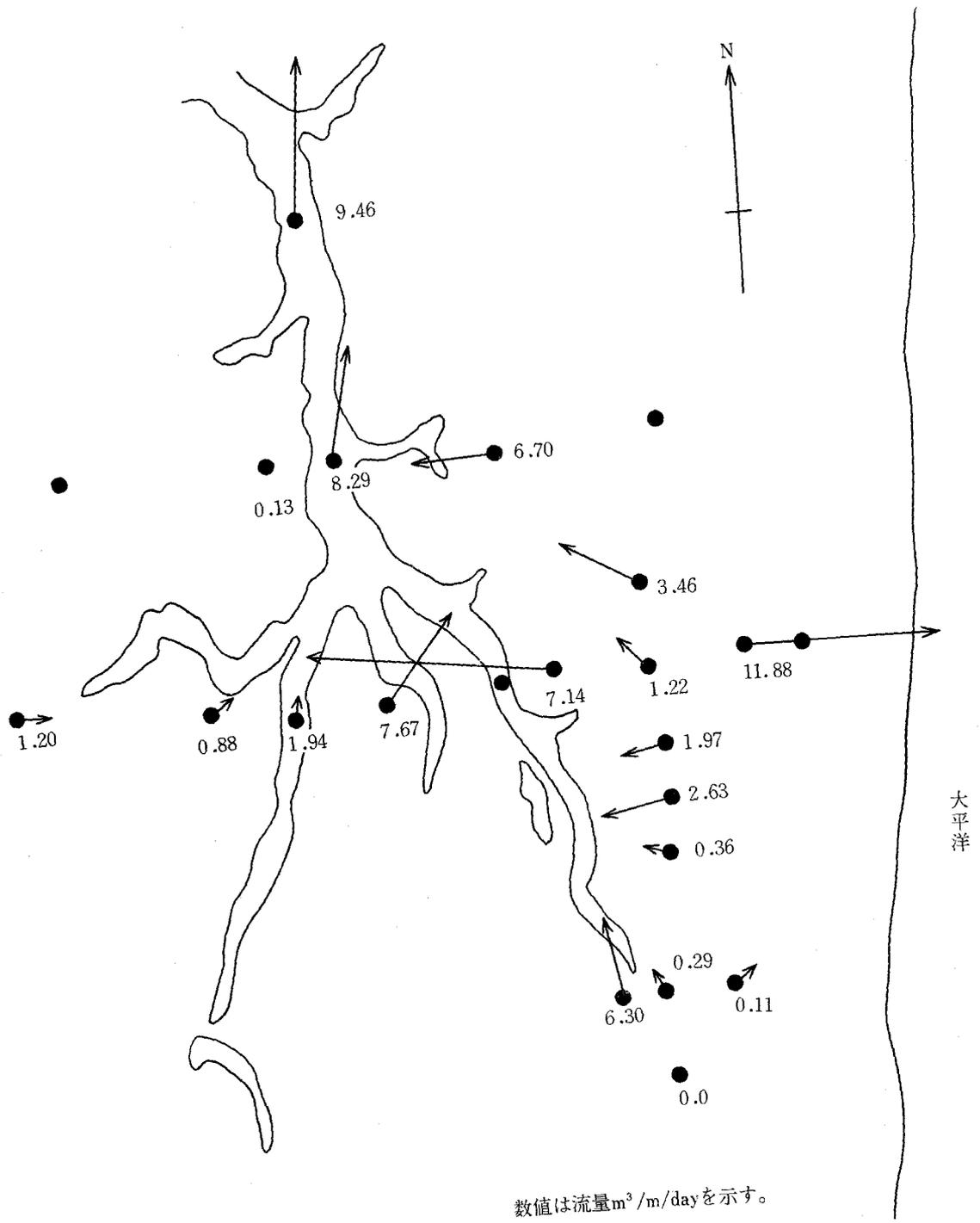


図 - 4.10 大洗研究所敷地の地下水流量

ムを作り、これに上記地下水を、カラムが放射性核種 A に関し飽和するまで加え続ける。そしてカラムに流入した核種 A の量から、流出した量と、カラム中試料土の間隙水中に残っている分を差し引いた値から、土に吸着された放射性物質の量を求め、 $C_A$  との比より  $k_d$  を知る。 $k_d$  は Sr につき  $k_d = 71 \text{ ml/g}$ , C。につき  $k_d = 108 \text{ ml/g}$ , I については  $k_d = 0$  をえた。また  $C_B$  は  $k_d$  の値があまりにも大きく (1000 以上) 正確な数値を得るに至らなかった。I に対する  $k_d$  が 0 であるのは、一般に陰イオンとして存在する沃素イオンは土に吸着されないことを示し、一方  $C_B$  は實際上土に強く吸着されてほとんど移動しない。各観測井に対して与えられた空けき率  $f$  および比重  $\rho$  と、上記によって得た  $k_d$  を用いて各観測井における地下水と放射性核種との移動速度の比を求め、図示する。

$^{90}\text{Sr}$  に関しては図-4・11,  $^{60}\text{Co}$  に関しては図-4・12,  $^{131}\text{I}$  については図-4・13に、それぞれの地下移動速度を示す。移動速度は  $^{90}\text{Sr}$  で年間最大 4.4 m,  $^{131}\text{I}$  では 440 m に達する。

(4・1) 式は放射性核種の拡散は考慮されていない。そこで第3章でのべたような地下水の拡散を知るために、3kg のウラン色素を観測井戸に投入し、そのまわりの井戸への出現を待ったが、地下水の流速が遅いため出現に時間がかかり、

どの観測井でもウランは検出できなかった。

#### 4-3-4 地下水の汚染より見た原子力施設の安全性

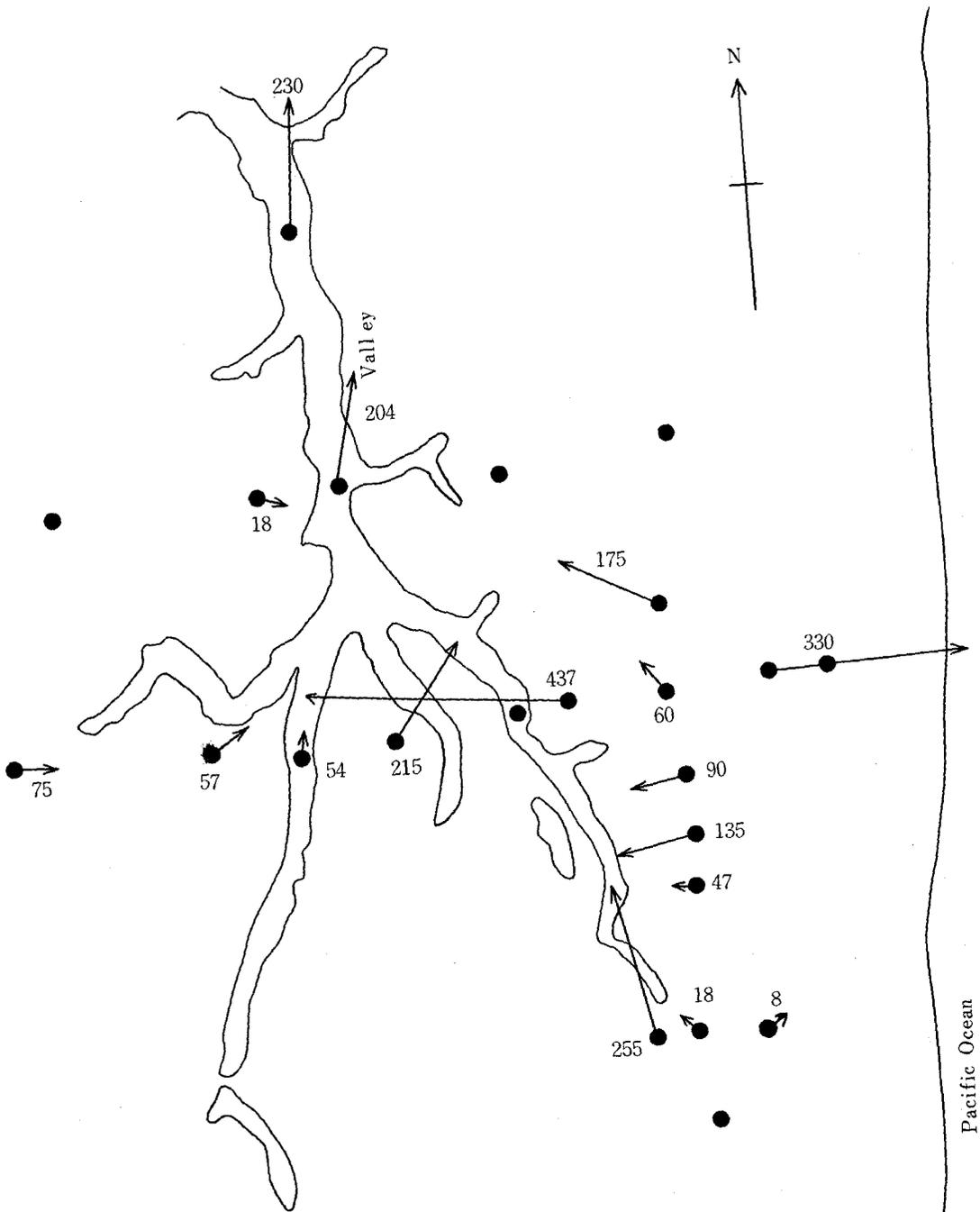
大洗研究所の地下水の動向より推定

した放射性核種の移動状況は、たとえば  $^{90}\text{Sr}$  については図-4・11の通りであるが、C。についての図-4・12, I についての図-4・13をも参考にして、同敷地を、放射性核種の地下水汚染よりみて図-4・14のように三つの地帯にわけてみた。4-3-2の地下水流動調査で明らかになったように、大洗研究所の地下水は、大部分が中央の沢に流入し、澗沼の方に流れるが、東部海岸台地には、地下水が直接海側に流入する部分もある。下流澗沼湖岸にはいくつかの浅井戸があり、浅層地下水が家庭用に使われているから、このような場所よりも図-4・14の zone I の方が高放射性廃棄物貯蔵庫や、その他放射性物質を多く内蔵する施設の立地に好ましいと考えられる。谷に流入する時間よりみて、zone II は、十分な地下水の管理、監視をすればこれらの施設を設置することができ、また止むをえず zone III に施設を置かねばならぬときは、地下水を汚染させぬように注意深く施工することが必要であろう。

#### 4-4 原子力発電により発生する固形廃棄物の地中処分に関する試算

##### 4-4-1 緒言

発電用原子炉の通常運転により発生する放射性廃棄物は、加圧水型で年間ドラム缶 2000 本、また沸騰水型では年間約 7000 本であるといわれるが、原子力発電の進展とともに、その最終処分が問題になって来た。最終処分法として、海洋処分と地中処分とが考えられるが、その優劣を比較するために、各の場合の環境汚染、人類への影響を試算するの必要を生じた。以下は電気



数値は $^{90}\text{Sr}$ の移動速度 (cm/year) を示す

図 - 4.11 大洗研究所における $^{90}\text{Sr}$ の地下移動

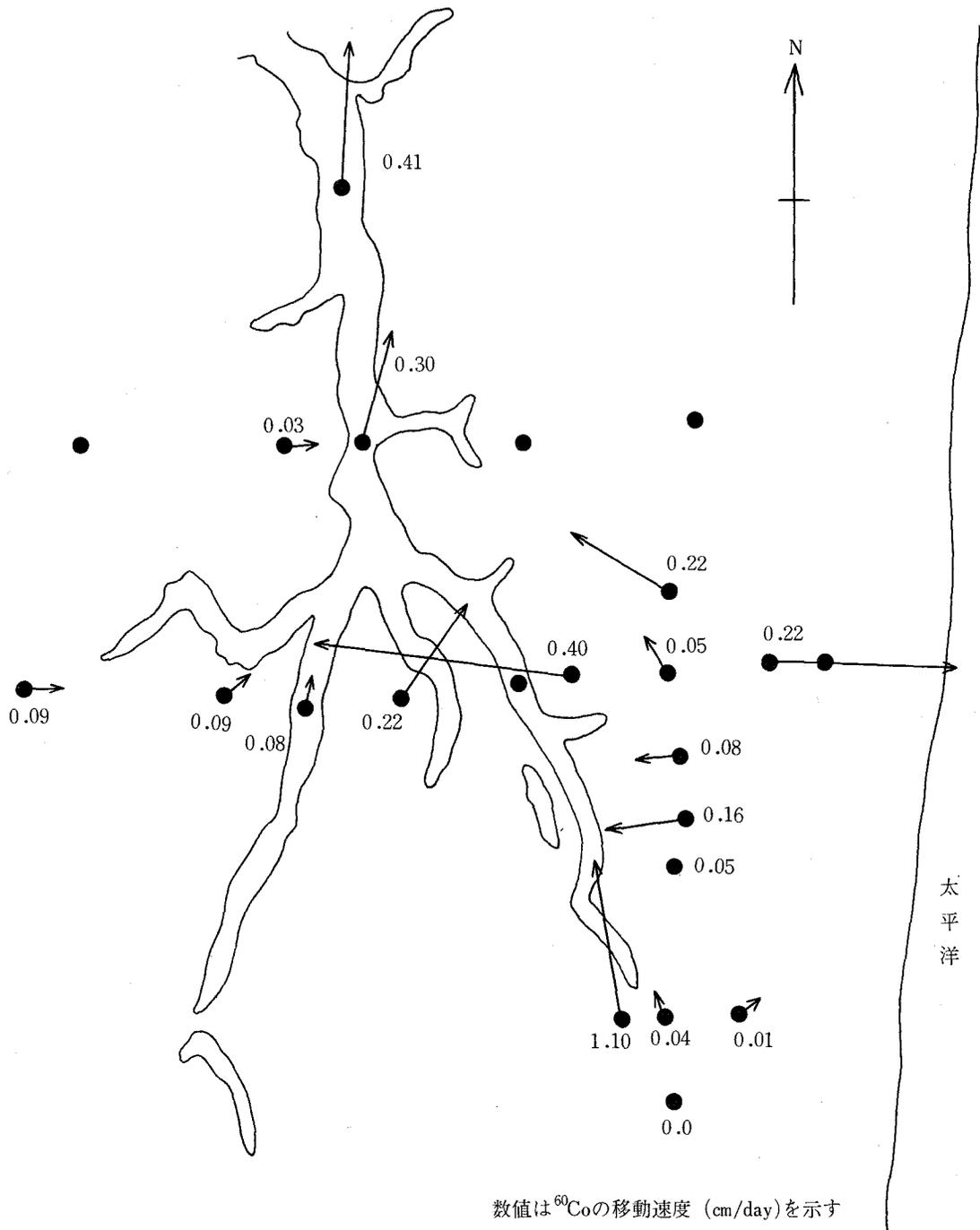


図 - 4・12 大洗研究所地下水中の $^{60}\text{Co}$ の移動速度

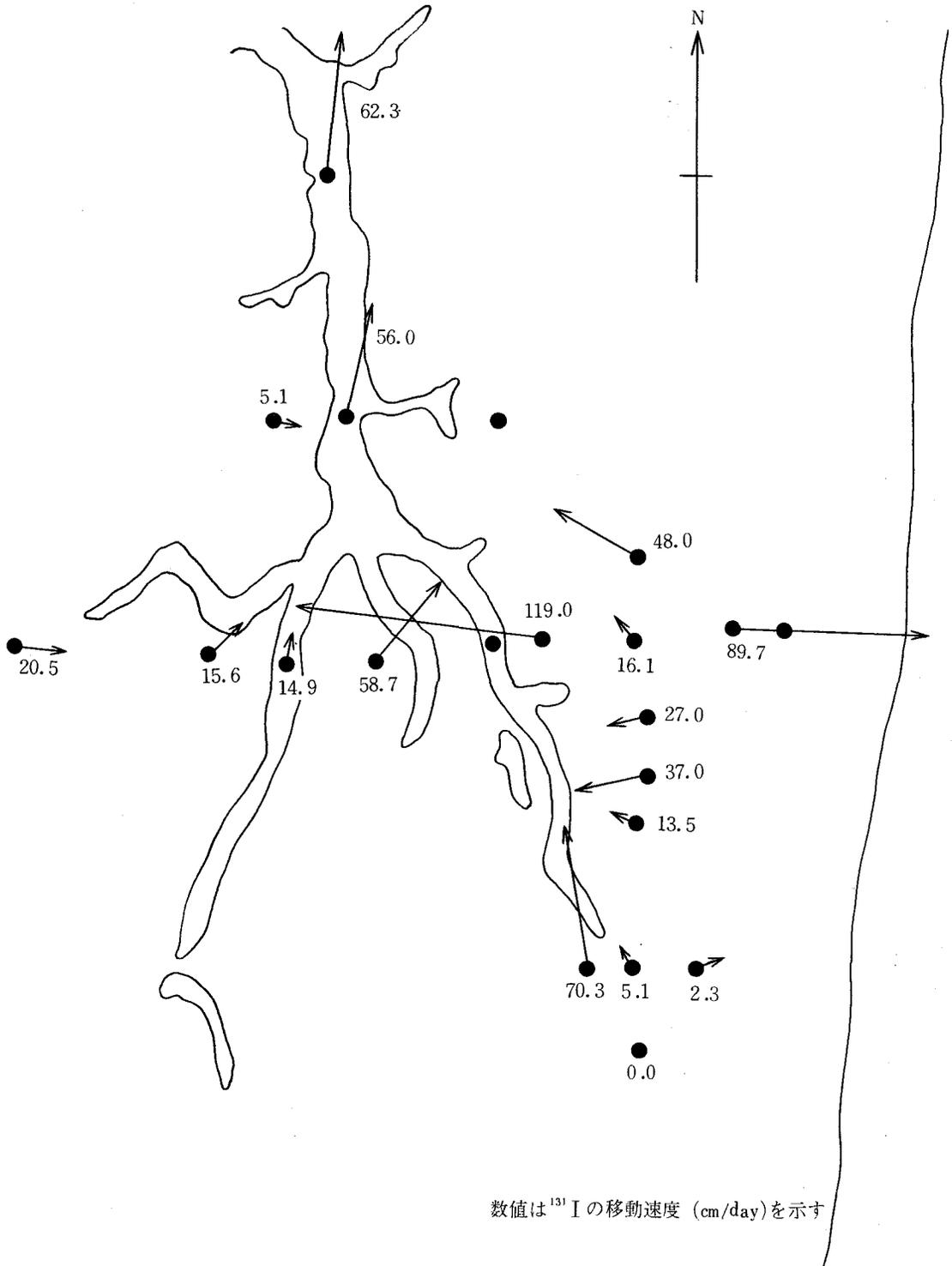


図 - 4.13 大洗研究所地下水中の $^{131}\text{I}$ の移動速度

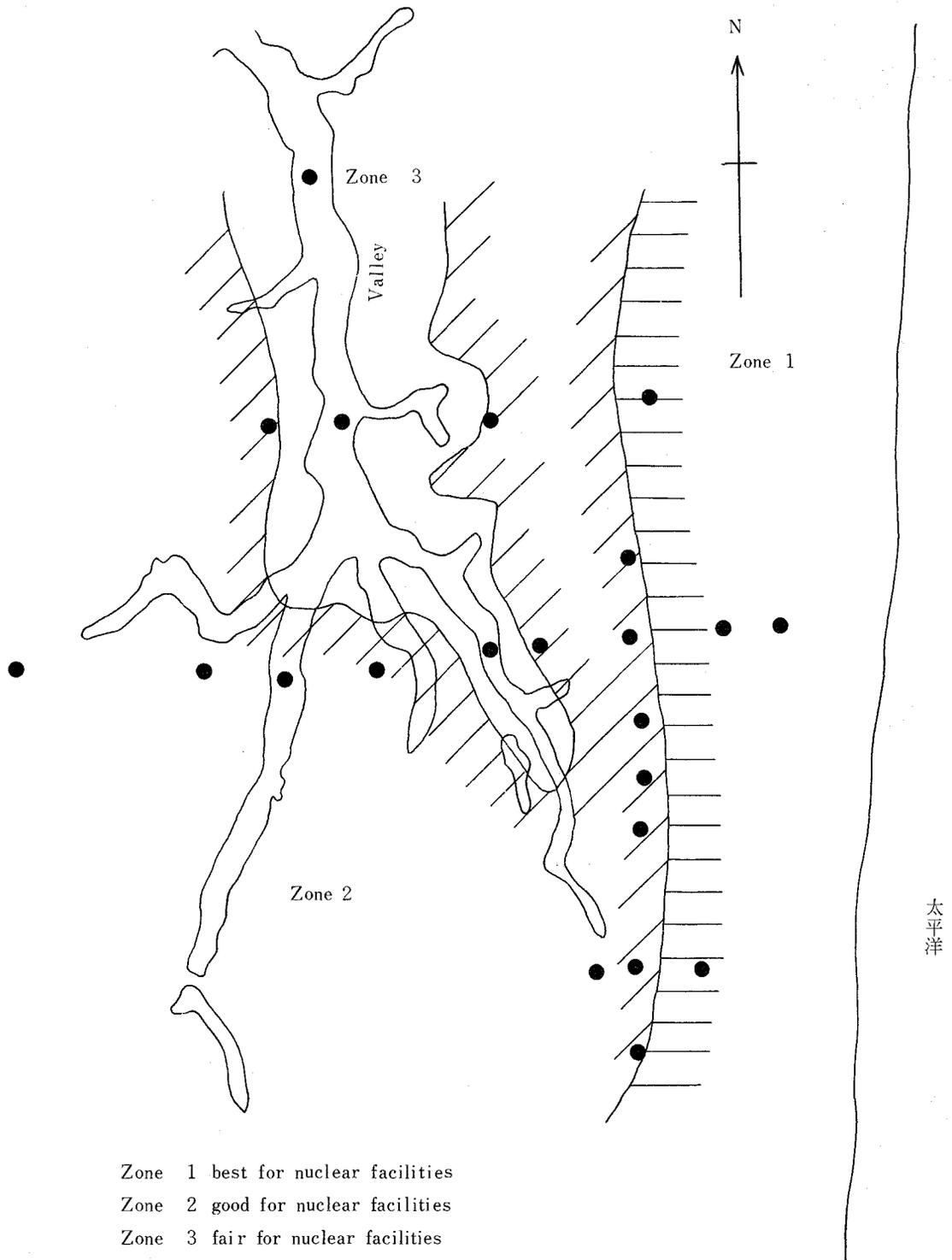


図-4・14 地下水の放射能汚染より見た大洗研究所の立地条件

出力30万kWていどの発電所から発生する放射性廃棄物の地中処分の可能性を検討したものである。

4-4-2 固体廃棄物の発生量 固体廃棄物の発生量は、全国的にみると将来大きな数値となるが、一発電所から発生する廃棄物の量はさして多量ではない。例えば、30万kW規模の発電所から一年間に発生する固体廃棄物の量は表-4.5、表-4.6の様になる(1)。

表-4.5 30万kWの発電用原子炉より発生する放射性固体廃棄物

	放射能 (Ci)	体積 (m³)
使用済み樹脂	96	30
フィルター	522	45
蒸発缶スラッジ	3	300
他の雑固体	—	15
計	621	395

原子力安全研究協会(2)

表-4.6 30万kWの発電用原子炉より発生する固体廃棄物中に含まれる核種

核種	半減期	放射能 (Ci)
$^{58}\text{Co}$	72 d	45
$^{60}\text{Co}$	5.2 y	510
$^{54}\text{Mn}$	300 d	15
$^{110}\text{Ag}$	270 d	21
$^{65}\text{Zn}$	244 d	0.6
$^{59}\text{Fe}$	45 d	0.06
$^{137}\text{Cs}$	30 y	30
$^{90}\text{Sr}$	30 y	0.15
計		621.75

原子力安全研究協会(2)

ところで処分方法としては、廃棄物を固化しドラム缶に詰め、外側をアスファルト・コーティングしたものを地面に掘った溝に並べ、土で埋め戻すものとする。廃棄容器にかかる土圧は、厚さ5(m)の盛土を行っても0.75 (Kg/cm<sup>2</sup>)程度である。従って、この土圧によって容器が破損することはないと考えてよい。

#### 4-4-3 廃棄物からの放射性核種の溶出

発電所より発生する廃棄物をコンクリート固化

してドラム缶に詰め、その外側をアスファルトで2 (cm) の厚さにコーティングする。この場合、放射性核種はコンクリートによる固化、ドラム缶壁、アスファルトと三重にわたり溶出を抑止される。鉄はアルカリ性ではさびないからドラム缶が内側から腐食することはない、またコンクリートは雨水にあわなければ風化しない。

まず一番外側のアスファルト層による放射性核種の溶出抑止力を考慮してみよう。ドラム缶がなく、単位体積当り  $C_0$  なる放射性核種を含むコンクリート固化体を2 (cm) の厚さのアスファルトでコーティングした場合の、アスファルト表面における放射性核種の濃度  $C$  は次式

$$C = C_0 \operatorname{erfc} \left( \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \quad (4.3)$$

で与えられる。ここに、 $x$  はアスファルト層の厚さ2 (cm) ,  $t$  は時間、 $D$  はアスファルト中での核種の拡散係数を表す。 $D$  の値は核種によっても異なるが、平均  $10^{-8} \sim 10^{-9}$  ( $\text{cm}^2/\text{day}$ ) であると報告されている(3)。いま、 $D = 10^{-8}$  ( $\text{cm}^2/\text{day}$ ) ,  $t = 100$  (年) として(4.3)式を計算すると、

$$\frac{x}{2\sqrt{Dt}} = \frac{2}{2\sqrt{(10^{-8})(3.65 \times 10^4)}} = 52.4$$

$$C = C_0 \operatorname{erfc}(52.4) \doteq 0$$

となる。このことは、コンクリート固化体に厚さ2 (cm) のアスファルト・コーティングをすれば、100年たっても放射性核種が外部にはほとんど溶出しないことを示している。しかも、実際の場合には、この上にドラム缶、コンクリートによって保護されているから溶出は更に少くなる。

この様に、放射性物質は三重に溶出を抑止されていること、深海に投棄する場合に比べて高圧がかからないから容器破損の恐れがないことなどから、地中埋設処分した場合、廃棄容器からの放射性物質の溶出は事故の場合に限ると考えてよい。

#### 4-4-4 放射性核種の地中での移動

前節で地中埋設した廃棄物から放射性物質が地中に

多量に溶出するのは事故によって廃棄容器が破損した場合であることを述べた。そこで、ここでは表-4.5、表-4.6に示した固体廃棄物を土中に埋設し、その10 (%) が事故により地中に溶出したとして事故解析を行なう。仮定として廃棄物の埋設場所は海岸から1 (km) 離れた土の中で、その地下水は一樣に直接海に流出するものとし、地下水の流速は平均30 ( $\text{cm}/\text{day}$ ) とする。また、土の空げき率  $f$  , 比重  $\rho$  としては、通常の砂層でよく見られる値として、 $f = 0.4$  ,  $\rho = 2.65$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) を用いる。

分配定数  $k_d$  は、A, B 両イオンが等価である場合には交換平衡定数  $K_{A-B}$  と

$$k_d = \frac{q_A}{C_A} = K_{A-B} \cdot \frac{C_B}{q_B}$$

なる関係にあり、核種、濃度、地下水の成分、温度、pH、共存塩の有無とその濃度、測定法、等々によって異った値をとる。相対速度  $K_f$  の値についてはすでに多く報告されている。例えば、W.J.Merritt と P.J.Parsons (4) は、 $^{90}\text{Sr}$  の場合最大  $1/16.4$ 、 $^{137}\text{Cs}$  の場合最大  $1/22.7$ 、P.Dejonghe, L.Baetsle et.al.(3) は、Sr の場合  $1/1 \sim 1/5$ 、Cs の場合  $\frac{1}{100} \sim \frac{1}{1,000}$ 、Pm の場合  $1/3,000$ 、Pu では  $1/3,000 \sim 1/10,000$ 、岩井、著者、西牧 (5) は  $^{90}\text{Sr}$  の場合  $1/65 \sim 1/70$ 、および硝酸酸性下で  $^{137}\text{Cs}$  の場合  $1/60$ 、 $^{90}\text{Sr}$  の場合  $1/1.25$ 、また著者、森沢 (6) は  $^{89}\text{Sr}$  の場合 0.1 N 硝酸酸性下で  $1/1.25$  なる数値を報告している。このように  $K_f$  の値は条件によって種々の値をとり、溶液の酸性度が高い場合には大きくなる。しかし通常地下水は中性と考えられるので、ここでは  $k_d$  の値として次の値を採用する。即ち、 $k_{d\text{Sr}} = 71 \text{ (ml/g)}$ 、 $k_{d\text{Co}} = 108 \text{ (ml/g)}$ 、 $k_{d\text{Cs}} > 1,000 \text{ (ml/g)}$  (7)。またその他の核種  $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{110}\text{Ag}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{59}\text{Fe}$  については  $k_d$  の資料がないので  $k_d = 0$  とする。

つぎに上述の理論式に従って、表-4.5、表-4.6 に示した核種の内海へ流出する核種の量を推算する。 $^{58}\text{Co}$  の場合、式(4.1)を用いて  $v_A$  を計算すると

$$\begin{aligned} v_A &= \frac{v}{1 + \frac{1-f}{f} \cdot \rho \cdot k_d} = \frac{30}{1 + \frac{1-0.4}{0.4} (2.65)(108)} \\ &= 0.0697 \text{ (cm/day)} \end{aligned}$$

従って、 $^{58}\text{Co}$  が海に出るまでの所要時間  $T$  は

$$\begin{aligned} T &= 100,000 \text{ (cm)} / 0.0697 \text{ (cm/day)} = 1.43 \times 10^6 \text{ (days)} \\ &= 3.92 \times 10^3 \text{ (years)} \end{aligned}$$

ゆえに  $^{58}\text{Co}$  の内海に流入する量は、自然崩壊による減少も考慮すると

$$\begin{aligned} &\left( 4.5 (C_i) \times \frac{10}{100} \right) \cdot e^{-\left( \frac{0.693}{72} \right) (1.43 \times 10^6)} = \\ &= 4.5 \times 10^{-5900} C_i \doteq 0 \end{aligned}$$

となる。即ち、 $^{58}\text{Co}$  は土に強く交換吸着されるため地中での平均移動速度が  $1 \text{ (mm/day)}$  に満たず、そのため海岸まで移動するのにほぼ 4,000 年もかかり、その間に自然崩壊によりほとんど消滅し

てしまうことがわかる。同じ計算を表-4・6の他の核種についても計算しその結果を表-4・7に示す。

表-4・7 海水中に流入する放射性物質

放射性核種	分配係数 $k_d$ (ml/g)	地中での移動速度 (cm/day)	海に達するまでの時間 (年)	海水中に流入する放射性物質 (Ci)
$^{58}\text{Co}$	108	$6.97 \times 10^{-2}$	$3.92 \times 10^3$	$4.50 \times 10^{-5900}$
$^{60}\text{Co}$	108	$6.97 \times 10^{-2}$	$3.92 \times 10^3$	$5.10 \times 10^{-226}$
$^{54}\text{Mn}$	0	30.0	9.13	$1.74 \times 10^{-4}$
$^{110}\text{Ag}$	0	30.0	9.13	$2.24 \times 10^{-4}$
$^{65}\text{Zn}$	0	30.0	9.13	$5.10 \times 10^{-6}$
$^{59}\text{Fe}$	0	30.0	9.13	$5.10 \times 10^{-25}$
$^{137}\text{Cs}$	1000以上	$7.55 \times 10^{-3}$ 以下	$3.62 \times 10^6$	$3.00 \times 10^{-36300}$ 以下
$^{90}\text{Sr}$	71	$1.06 \times 10^{-1}$	$2.58 \times 10^3$	$1.50 \times 10^{-28}$

上表をみると、 $^{137}\text{Cs}$  が事故により地中に放出されてから海岸に達するまでにほぼ360万年を要し、その後  $3.0 \times 10^{-36300}$  (Ci) の  $^{137}\text{Cs}$  が海へ流出することが解るが、この放射エネルギーは無視できる程度に少量である。同様な理由から  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{58}\text{Co}$  についても無視することができる。

上記の計算では、固体廃棄物から溶出する放射性物質が直接に地下透水層中に達するとの仮定を暗黙の内に設けているが、実際に廃棄物を地中埋設処分する場合には地下水面より上の地層中に廃棄するので、核種の地中での移動速度は上記の計算値より更に小さくなる。また、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{110}\text{Ag}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{59}\text{Fe}$  の分配係数については資料不足の為に最も安全側の仮定 ( $k_d = 0$ ) を用いたが、これらの核種が土壌によって交換吸着されることは明らかであるから、 $k_d$  値を実測すればこれらの海への流出量は更に数桁少くなる。

#### 4-4-5 人体への影響

地中埋設処分した廃棄物から溶出した放射性物質が地下水の流れに乗って海へ流出し、海産物によって濃縮され、これを人間が摂取することによって被曝する場合の体内被曝線量率を算定する。表-4・7で与えられる放射性核種の全量が廃棄物埋設地海岸の一点から同時に海水中に移行し、この核種は海岸の一点を中心とし、中心角  $\theta$  の扇状に拡散していくと仮定する。この場合、 $t$  時間後の放出点から距離  $r$  離れた海水中の核種濃度  $S(r, t)$  は次式

$$S(r, t) = \frac{M}{4\pi \cdot \theta P \cdot Dt} \exp\left[-\frac{r^2}{4Dt}\right] \quad (4.3)$$

で与えられる。従って、 $t$ 時間後の最大濃度  $S_0(t)$  は次式

$$S_0(t) = \frac{M}{4\pi \cdot \theta \cdot P \cdot Dt} \quad (4.4)$$

である。ここに、 $M$ は海水中へ流入する核種の量、 $P$ は平均混合深さ、 $D$ は拡散係数である。

次に、 $t=1$  (year),  $D=10^4$  ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ),  $P=6$  (m),  $\theta=\pi/6$  (8,9) なる数値を仮定し、式(4.4)を用いて海水中の核種濃度を推算する。例えば、 $^{90}\text{Sr}$ の場合は表-4.7より、 $M=1.50 \times 10^{-28}$  (Ci) であるから式(4.4)より

$$S_0 = \frac{1.50 \times 10^{-28}}{4\pi \cdot (\pi/6) \cdot (600) \cdot (10^4 \times 3.15 \times 10^7)} = 1.2 \times 10^{-37} (\mu\text{Ci}/\text{ml})$$

同様な計算を他の核種についても行い、その結果を表-4.8に示す。

表-4.8 海水中での放射能濃度

核種	濃度	核種	濃度
$^{58}\text{Co}$	—	$^{65}\text{Zn}$	$4.1 \times 10^{-15}$
$^{60}\text{Co}$	—	$^{59}\text{Fe}$	$4.1 \times 10^{-34}$
$^{54}\text{Mn}$	$1.4 \times 10^{-13}$	$^{137}\text{Cs}$	—
$^{110}\text{Ag}$	$1.8 \times 10^{-13}$	$^{90}\text{Sr}$	$1.2 \times 10^{-37}$

上表に示された核種濃度は、許容水中濃度よりもはるかに低い値である。参考のために、海産物、海水中での放射能許容限度を表-4.9(10)に示す。表中空欄はデータが無いことを意味する。

表-4.9 海水中と海産物中における放射性核種の許容濃度

核種	飲料水中における許容濃度	海産物中における許容濃度	濃縮係数	海水中における許容濃度
	MPC <sub>w</sub> ( $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ )	C <sub>ppo</sub> ( $\mu\text{Ci}/\text{g}$ )		C.F.
$^{58}\text{Co}$	$9 \times 10^{-4}$	$2.6 \times 10^{-3}$	$10^4$	$2 \times 10^{-7}$
$^{60}\text{Co}$	$3 \times 10^{-4}$	$8.6 \times 10^{-4}$	$10^4$	$8 \times 10^{-8}$
$^{54}\text{Mn}$	$1 \times 10^{-3}$	$2.9 \times 10^{-3}$		
$^{110}\text{Ag}$	$1 \times 10^{-3}$	$2.9 \times 10^{-3}$		
$^{65}\text{Zn}$	$1 \times 10^{-3}$	$2.8 \times 10^{-3}$	$4 \times 10^4$	$2 \times 10^{-8}$
$^{59}\text{Fe}$	$5 \times 10^{-4}$	$1.4 \times 10^{-3}$	$7.8 \times 10^4$	$6 \times 10^{-9}$
$^{137}\text{Cs}$	$2 \times 10^{-4}$	$5.7 \times 10^{-4}$	50	$4 \times 10^{-6}$
$^{90}\text{Sr}$	$1 \times 10^{-6}$	$2.8 \times 10^{-6}$	200	$5 \times 10^{-9}$

海水中での核種濃度を  $S$  ( $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ), 海産生物への濃縮係数を  $C.F.$ , 海産物の摂取量を  $I$  ( $g/\text{day}$ ), I.C.R.P. 飲料水濃度を  $\text{MPC}_w$  ( $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ ),  $\text{MPC}_w$  に対する年線量率を  $D$  ( $\text{rem}/\text{year}$ ) とすると, 求める線量率  $D_s$  ( $\text{mrem}/\text{year}$ ) は次式で与えられる (2)。

$$D_s = D \cdot \frac{S \cdot C.F. \cdot I}{\text{MPC}_w \cdot 2200} \quad (4.5)$$

$C.F.$ ,  $\text{MPC}_w$  としては表-4.9の値を,  $S$ としては表-4.8の値を用い, また,  $T=300$  ( $g/\text{day}$ ),  $D=5$  ( $\text{rem}/\text{year}$ )として式(4.5)を用いて  $D_s$  の値を計算した結果を表-4.10に示す。

表 - 4.10 被 曝 線 量 率

核 種	線 量 率	核 種	線 量 率
$^{58}\text{Co}$	negligible	$^{65}\text{Zn}$	$4.1 \times 10^{-8}$
$^{60}\text{Co}$	negligible	$^{59}\text{Fe}$	$6.4 \times 10^{-26}$
$^{54}\text{Mn}$		$^{137}\text{Cs}$	negligible
$^{110}\text{Ag}$		$^{90}\text{Sr}$	$1.6 \times 10^{-9}$

I.C.R.P. 勧告の一般人に対する許容最大線量率が  $0.5$  ( $\text{rem}/\text{year}$ )であること, フォールアウトを除く自然放射線からの被曝線量率が生殖腺に対して  $125$  ( $\text{mrem}/\text{year}$ ), 骨細胞に対して  $137$  ( $\text{mrem}/\text{year}$ ), 骨髓に対して平均  $122$  ( $\text{mrem}/\text{year}$ ) であり, また  $1963$  年におけるフォールアウト中の核種からの体外被曝への寄与が  $15 \sim 20$  ( $\text{mrem}/\text{year}$ ) である (11,2) こと等から考えてみても, 表-4.10の値が問題にならない程小さい値であることは容易に理解できる。

4-4-6 まとめ 発電用原子炉から発生する放射性廃棄物を地中に埋設処分した場合に, 事故によって破損した廃棄容器から土壤中に放出された核種が地下水と共に海へ流出し, 更にそれが海産物に濃縮されて人間に摂取されるという一連のプロセスを想定して地中処分の安全性を検討した。その結果, 設定した条件下では, この処分方法が放射性廃棄物を陸上で処分する場合の有望な一方法であり, その安全性が十分に保証されることが推定された。しかしながら, 実際に放射性廃棄物を埋設処分するには以上で述べた技術的な安全性の保証をより綿密確実化するという問題の他にも法律上の問題, 経済上の問題が残されており, これらの問題点を踏まえて総合的に検討することが必要なのはいうまでもない。

## 参 考 文 献

1. 川崎ボーリング株式会社, 大洗敷地内地下水流動調査報告書 (昭41年)
2. 原子力安全研究協会, 固体廃棄物処理処分専門委員会中間報告書, 原安協報告-15 (昭和44年)
3. Dejonghe, P., L.Baetsle et.al., Asphalt conditioning and underground storage of medium activity, 3rd Int. conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, 28, 774 (1964)
4. Merritt, W.F. and P.J. Parsons, The safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass, Health Physics, 10 655 (1964)
5. 岩井重久, 井上頼輝, 西牧研壮, 再処理廃液中核種の地下移動, 日本原子力学会誌 10, 435 (1968)
6. 井上頼輝, 森沢真輔, 放射性ストロンチウムの地中での挙動, 土木学会第24回年次学術講演会講演集, II-105 (昭和44年)
7. Inoue, Y., Prediction of radionuclide migration in ground water at the Japan Atomic Energy Research Institute, Disposal of Radioactive Wastes into the Ground, SM-93/15, IAEA (1967)
8. 岩井重久, 井上頼輝, 海洋の汚濁物質受容限界について, 土木学会第5回衛生工学研究討論会講演論文集, 28-35頁 (昭和44年)
9. National Academy of Science-National Research Council(U.S.A.), Considerations on the disposal of radioactive wastes from nuclear powered ships into the marine environment, (1959)
10. 岩井重久, 井上頼輝, 原子力船による海洋の汚染について, 水処理技術, 4, 9, 18-22 (昭和38年)
11. 江藤秀雄 等, 放射線の防護, 丸善 (昭和43年)

## 第 5 章 結 論

### 5-1 本研究の総括

本論文の主要部分は4章より成る。第1章では、放射性廃棄物の処分、ことに地中処分について論じた。原子力施設から発生する放射性廃棄物を、環境に直接放出しても安全な量の多い部分と、放射能濃度の高い量の少ない部分に分けることを処理(treatment)といい、処理により発生した放射能濃度の高い部分を、安全に環境中に始末するのを、処分(disposal)という。また、処理と処分をひっくるめて、管理(management)なる言葉が使われるようになって来た。処分の方法としては、ロケットを使って宇宙外に投棄する方法、 $^{90}\text{Sr}$ など危険度の高い放射性物質を原子炉で中性子照射して、短半減期の比較的安全的な核種に変える方法などが提案されているが、いずれも将来の研究に待つべき点が多く、現実に実施可能なのは、コンクリートあるいはアスファルトに固化してドラム缶に詰め、2,000 m以上の水深を有する深海に捨てる海洋処分と、地中に埋める地中処分とに限られる。海洋処分は海の大い水量による希釈効果を期待するもので、大量の放射性物質を処分できるが、公海に処分するために各国の利害がからまる海洋法の規制を受け、また、深海に投棄すると、あとで Monitoring ができないなどの欠点がある。さらに海産物は放射能濃度の低い蛋白源であるから、将来も未汚染のまま人類のために残しておきたいとする意見もある。一方地中処分は立地条件に制約があって、どこでも実施するわけにはいかず、大量の廃棄物を処分するには、土地面積からみても不利である。法的にも放射性物質を管理せずに土中に埋めることは禁ぜられているので、国内法の整備が必要になってくる。しかし、Monitoring が可能であるし、処分が簡単で、経費も海洋処分の1/10程度で済むなどの利点がある。

土の持つ交換容量は、人工のイオン交換樹脂に比べれば小さいが、体積が大きいので全体として大きい容量となる。このため放射性物質が地下に漏れても、土に交換吸着されて移動速度はきわめて遅くなり、地表水に現われるまでに地下で自己崩壊を起して、安全無害化する。広大な土地を有する欧米諸国では、放射性廃棄物の地中処分を盛んに行っており、ことにソ連は地中に管理保管するのが原則となっている。米国では海洋処分と地中処分とを併用して来たが、海洋法による国際上の問題が起ってからは、全面的に地中処分に切りかえた。処分の方法は液体にあっては、土中に注入したり、溝を掘って滲透させる方法がとられる。また、固体は溝を掘って埋め、あとから土を盛るといった簡単な方法がとられる。廃水や固型廃棄物ばかりでなく、気体さえも地下処分の対象として検討されている。

放射性廃棄物の地中処分に当り、工学的に最も問題となるのは、地中に処分した放射性物質の移動を推定する方法である。このために観測井を多数掘削し、地下水を揚水して、Monitoring を行いが、

地層は均質でない場合が多いので、Monitor されずに行方不明になってしまう放射性物質が、処分量の30～60%に達する。このために、放射性物質の地下移動を事前に予測する方法の確立が待たれていた。

第2章では、放射性物質の地下移動を推定する理論を述べた。従来までの予測法は、固定床イオン交換塔のクロマトグラフに対して展開された理論をそのまま応用したものであったが、地層は不均質であることが多く、地下水の流れも一次元で近似できる場合は少い。そこで、複雑な地層中の放射性物質の移動を、地下水の流水と関連づけてとらえ、地層の空けき率、比重と土の放射性核種に対して持つ分配係数とを知ることによって、地下水の拡散から、放射性物質の動きを推定する方法を提案した。この方法だと、二次元、三次元の複雑な流れに対しても適用することができ、また、放射性物質の移動速度よりも、地下水の移動速度の方が大きいので、観測井へ放射性物質が到達する前に、その溶出を予測できる。この方法は、つぎの4つの条件が満足されることを要する。

1. 地下水の移動速度が遅く、土と水中の放射性物質との間に交換平衡が成立すること。
2. 流線が時間的に変化しないこと。
3. 地層の物理化学的性質が均一であること、特に分配係数を一定と見なしうること。
4. 空けき率が一定であること。

第3章では、第2章の理論を実験的に検証した。Greensandを用いてカラム実験をしたところ、著者の理論は流速の遅いときに適用できることを知った。ことに、溶出曲線のはじめの部分の適合が良好である。しかし、流速が早くなると、条件(1)が成立しなくなるので、実験値は理論からはずれる。

一井から放射性物質を地下に注入し、他井から同量の地下水を汲み上げる二井系のモデルを、カラム実験と同じGreensandを用いて行ったところ、このように二次元の流線を持つ場合にも、予測法はよく適合することを知った。ただ、実験の中には予測値が、実験値よりも遅く出た場合があったが、これはモデル内で密度流が起り、槽の持つ交換容量を十分に利用できなかったためであると考えられる。注入井と揚水井の間を3等分する位置に、2本の中間採水点を設けたが、この点への $^{90}\text{Sr}$ の到達もよく予測できている。

上下を不透水の粘土で覆われた、厚さ2.4 mの被圧帯水層中に二井系を作り、 $^{90}\text{Sr}$ を注入して野外実験を行ったところ、揚水井、および揚水井と注入井を結ぶ線上にある観測井では、放射性物質の到達点、peakの到達時間、溶出曲線の全体の形とも、良い一致をみた。しかし、他の井戸では予測値と実測値とは傾向として一致するが、実測値の変動が予測値のそれよりも激しかった。これは主として注入水の水質の変動に基くものと思われる。

第4章では、主として原子力施設の地下水放射能汚染調査について述べた。日本原子力研究所東海研究所の地下水調査では、水位観測が同時測定でないので、明瞭な結論は出せなかったが、放射性物質が地下に漏れたときの動向を、大よそ明らかにすることができた。第2節の大洗研究所での地下水調査は、

同敷地内に、保健物理学上重要な $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ が漏れたときの挙動を調査した。同敷地内には地下水が直接海に流入する部分と、人家の多い内陸へ向って流れる区域とがあるので、地下水放射能汚染から見た立地条件を考えて、原子力施設の設置位置を、三つの zone に別けて示した。第3節では、発電用原子炉から発生する放射性廃棄物を地中に埋設処分した場合に事故によって破損した廃棄容器から土壤中に放出された核種が、地下水と共に海に流出し、更にそれが海産物に濃縮されて人間に摂取されるという一連のプロセスを想定して、地中処分の安全性を検討した。その結果、設定した条件下では安全性が十分保証されることがわかった。

## 5-2 謝 辞

本研究を始めたのは、昭和29年、わが国によりやく放射性同位元素が入り始めた頃であった。その頃から一貫して、著者の研究を暖かく御指導下さった岩井重久教授にまず謝意を表したい。著者は学部特別研究として、砂層による溶解性物質の除去を、また修士論文として、イオン交換による放射性廃水の処理をとり上げて、固定床イオン交換樹脂の挙動を研究したのが、本研究の足掛りとなった。

この段階で、京都大学土木工学教室合田健助教授（現、衛生工学科教授）、三瀬貞氏（現、大阪市立大教授）、神山桂一氏（現、北海道大学助教授）、筒井天尊氏（現、京都大学原子炉実験所教授）の御指導を受けた。感謝の意を表したい。著者は昭和33年から4年間、米国カリフォルニア大学に在学し、ここで、W.J.Kaufman 教授の指導を受けて、研究を進展させることができた。第2章、第3章は在米時代の研究に負うところが多い。ことに放射性廃棄物の地中処分の盛んな米国にあっては、多くの研究者がこの研究に従事しており、Oak Ridge研究所のDon Jacobs、T.Tamura、W.De Lagna、Hanford研究所のPearce、Chalk River 研究所のPersons、ベルギーMol 研究所のde Jonghe氏などの研究者から暖かく支援を受けた。実験はカリフォルニア大学衛生工学研究所の研究員、P.B.Palmer 氏の助力に負うところが多い。

第4章は日本原子力研究所の杉本仙市廃棄物処理場長の要請を受けて行ったものである。観測には、京都大学衛生工学科学生、西牧研壮君（現、京都大学原子炉実験所助手）、芝尾光三君（現、京都大学文学部大学院学生）の助力を得た。関係諸氏に謝意を表する。

以上、直接御協力下さった方々の他に、京都大学工学部衛生工学教室の諸氏に、衛生工学についての考え方などで、間接的に御教示を得ている。ここに感謝の意を表する。

## 付録 - 1 第二章 (2・30) 式の誘導

(2・30)式は、すでに良く知られているが、断面平均流速や、(2・40)の時間変換の物理的意義を知る上に重要であると考えられるので、ここに誘導法を述べる。

多孔体中に、直交座標  $x, y, z$  をとり、その中に、図-1のように側面が各軸に平行で、辺の長さが  $dx, dy, dz$  である直方体  $ABCD-A'B'C'D'$  を考える。その中心点を  $P(x, y, z)$  とする。 $ABCD$ 面を通過して単位時間に流入する特定放射性核種の量は、

$$dy, dz \left( F_x - \frac{\partial F_x}{\partial x} \cdot \frac{dx}{2} \right)$$

で与えられる。ここに  $F_x$  は  $P$  と直交する面の単位面積当り通過する核種の Flux である。

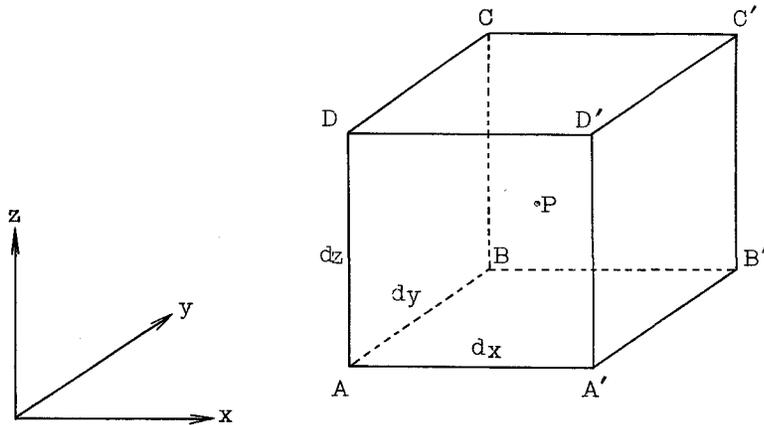


図 - 1 質量保存則の説明図

一方、同じく単位時間に  $A'B'C'D'$  より出て行く核種の量は

$$dy \cdot dz \left( F_x + \frac{\partial F_x}{\partial x} \cdot \frac{dx}{2} \right)$$

である。

かくして直方体の  $x$  方向の核種の増加は、

$$- dx dy dz \frac{\partial F_x}{\partial x}$$

となる。同様に、 $y, z$  方向については、

$$- dx dy dz \frac{\partial F_y}{\partial y}$$

$$- dx dy dz \frac{\partial F_z}{\partial z}$$

が得られる。

ところで直方体の体積は  $dx dy dz$  で、その中に存在する核種の量は

$$\{ fC + (1-f)\rho q \} dx dy dz$$

である。ここに  $f$  は媒体の空けき率、 $\rho$  は比重 ( $g/cm^3$ )、 $C$  は特定放射性核種の水中での濃度 ( $\mu Ci/ml$ )、 $q$  は特定放射性核種の土に吸着された量 ( $\mu Ci/g$ ) である。従って、この立方体に存在する核種量は、単位時間に

$$\frac{\partial}{\partial t} \{ fC + (1-f)\rho q \} dx dy dz$$

だけ増加するはずであるが、これは、立方体の  $x, y, z$  方向についての核種の増加量の和に等しいはずである。かくして、

$$\frac{\partial}{\partial t} \{ fC + (1-f)\rho q \} = - \frac{\partial F_x}{\partial x} - \frac{\partial F_y}{\partial y} - \frac{\partial F_z}{\partial z}$$

が得られる。

$F$  は 2 成分から成っている。一つは水の流動によって運ばれるもので、 $f\bar{v}C$  で書き表わせる。ここに  $\bar{v}$  は、断面平均流速 (interstitial average velocity) と呼ばれるもので、多孔体内の空けき内の水の流れは、方向も流速も一様ではないが、その軸方向の平均値を示したものであり、化学工学や衛生工学で使われる、流量を見かけの断面積で割った、いわゆる「ろ速」ではない。他の一つの要素は拡散によって運ばれるもので、濃度勾配に比例する。従って、 $F_x, F_y$  は、

$$F_x = C\bar{v}_x f - D_x f \frac{\partial C}{\partial x}$$

$$F_y = C\bar{v}_y f - D_y f \frac{\partial C}{\partial y}$$

$$F_z = C\bar{v}_z f - D_z f \frac{\partial C}{\partial z}$$

である。ここに  $D_x, D_y, D_z$  は  $x, y, z$  方向の拡散係数 ( $cm^2/sec$ ) である。これを上式に代入して、

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ C + \frac{1-f}{f} \rho q \right\} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial}{\partial x} (\bar{v}_x C) - \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v}_y C) - \frac{\partial}{\partial z} (\bar{v}_z C) \quad (2.30)$$

が得られる。

## 付録 - 2 酢酸アンモニウム法による土の交換容量の測定

1. 250 ml ビーカーに 100 ml の中性 1 N-NH<sub>3</sub>・C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O<sub>2</sub> と土を入れる。
2. watch glass でふたをして、2時間よくかきまぜながら steam bath にかける。
3. 吸引ろ斗に、NH<sub>3</sub>・C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O<sub>2</sub> でしめらせたろ紙を敷き、ゆっくりと吸引しながら、ビーカーの土を中性 1 N-NH<sub>3</sub>・C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O<sub>2</sub> を用いてろ斗に移す。
4. 5 ml の中性 1 N-NH<sub>3</sub>Cl で土をぬらし、吸引する。
5. 中性メチルアルコールで、洗滌水に AgNO<sub>3</sub> を加えても白沈が生じなくなるまで洗う。メチルアルコールは NH<sub>4</sub>OH で pH を調整する。
6. 土が乾くまで吸引する。
7. 土をすべて 500 ml の Kjeldahl フラスコに移す。ろ斗についた土は蒸留水で洗う。蒸留水を加えて全量をフラスコの 2/3 にする。
8. 突沸をさけるために軽石を入れる。
9. 500 ml の三角フラスコに 50 ml の飽和 H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> と、1 ml の methyl red - brom cresol green 指示薬を加え、この中に Kjeldahl 蒸溜液を、120~160 ml 蒸溜してとり込む。
10. 蒸留した水を 0.0286 N-H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> で滴定する。H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 1 ml は 0.4 mg の窒素に相当する。  
この方法は、窒素肥料の肥効と関連して、農学の方面で広く使われているものである。

### 付録 - 3      カラム法による交換容量と質量作用定数の測定法 (Ca-Sr の場合)

- (a) 土を 6 mesh (3.36 mm) のフルイにかけ、これを通らなかった石は交換容量がないと仮定する。
- (b) フルイを通った土と、通らなかった土を秤量する。
- (c) フルイを通った土 100 g を直径 2.5 cm、長さ 30 cm のガラス筒につめる。土を少しずつ詰めながら、ガラス壁をたたくと比較的均一に詰まる。
- (d) カラムの上と下には、土が流出しないように glass wool を詰める。
- (e) カラムの上と下には T 字管をつけておくと、カラムから空気を抜く作業が簡単にできる。
- (f) T 字管をつけたまま、カラムを秤量する。室温はできる限り恒温に保った方がよい。
- (g) 10 分間カラムに CO<sub>2</sub> ガスを通す。
- (h) <sup>45</sup>Ca を加えた 0.01 N-CaCl<sub>2</sub> と、<sup>90</sup>Sr または <sup>89</sup>Sr を加えた 1 ppm の SrCl<sub>2</sub> をカラムの下から上向きに通す。流量はできる限り低い方がよい。また液は中性で、CaCO<sub>3</sub> に対し平衡状態を保つようにする。
- (i) 流出水について、<sup>45</sup>Ca、<sup>90</sup>Sr を測定する。
- (j) カラムの通水を 12 時間止めてから、カラムの空げきの体積だけ採水し、その中の <sup>90</sup>Sr、<sup>45</sup>Ca の濃度が原液の 90% になれば実験を止める。
- (k) カラムが <sup>90</sup>Sr、<sup>45</sup>Ca で飽和すれば、今度は (h) の溶液で <sup>90</sup>Sr、<sup>45</sup>Ca を含まぬ液で溶離する。通す液の量と、流量とは (j) に述べたと同じようにする。
- (l) カラムを飽和させるに要した Ca の量を <sup>45</sup>Ca の量から求めて交換容量を計算する。
- (m) カラムを飽和させるに要した Sr の量を、<sup>90</sup>Sr の量から求めて、(l) の値との比から mass action constant を求める。

## 付録 - 4 Point Dilution 法による地下水流速の測定

地下水の流速は、1つの井戸に tracer を投入し、他の井戸に tracer が表れる時間を観測して求めるが、この方法だと地下水の流速が遅いために観測に数週間、あるいは数ヶ月かかることがある。本法は、井戸の中に tracer を入れて、その濃度の変化より流速を測定するもので、数時間の観測で数値を求めることができる。ただし流向はこの方法では測定できない。

いま井戸内 tracer の濃度を  $C$ 、時間  $t = 0$  のときの濃度を  $C_0$ 、容器の体積を  $V$ 、井戸の直径を  $d$ 、単位時間に流入する地下水量を  $Q$  としたとき、井戸内で完全な混合が起っていると仮定すれば

$$\frac{dC}{dt} = -\frac{Q}{V} C \quad (1)$$

をうる。時間  $t$  につき積分すれば

$$\ln \frac{C}{C_0} = -\frac{Q}{V} t = -\frac{Q}{\frac{\pi d^2}{4}} t \quad (2)$$

である。いま均一な地下水流中に直径  $d$  の空洞を作ったとき、流線はこの空洞に吸引されるが、 $\omega = z + \frac{1}{z}$  なる複素変換をほどこせば直径 1 の円は長さ 2 の線分に写像されるから、巾  $2d$  の流線が直径  $d$  の空洞に吸引されることを知る。すなわち地下水流  $Q$  は、 $Q = 2df\bar{v}$  で表わすことができる。ここに  $\bar{v}$  は断面平均流速である。これを(2)式に代入して

$$f\bar{v} = \frac{\pi d \ln \frac{C_0}{C}}{8t} \quad (3)$$

をうる。この式を用いて井戸内に投入したトレーサーの濃度  $C$  の時間的な変化を知ることにより、地下水の流速  $f\bar{v}$  を求めることができる。この方法で得られる流速は、いわゆるろ速  $f\bar{v}$  であって、断面平均流速  $\bar{v}$  を求めるには、地層の空けき率  $f$  を知らなければならない。逆に、二井間を tracer が移動するに要する時間から求める流速は、断面平均流速であるから、Point Dilution 法と組合せることにより、地層の空けき率を推定することが理論的には可能である。