

研究論文

放射性廃棄物処分による地下帯水層汚染の簡易評価法

福井正美^{*1}, 内田滋夫^{*2}, 桂山幸典^{*1}

(1980年8月18日受理)

(1980年10月22日再受理)

A Convenient Method for Estimating the Contaminated Zone of a Subsurface Aquifer Resulting from Radioactive Waste Disposal into Ground

Masami FUKUI,^{*1} Shigeo UCHIDA^{*2} and Kousuke KATSURAYAMA^{*1}

Studies were conducted to estimate the contamination spread resulting from the radioactive waste disposal into a subsurface aquifer. A general equation, expressing the contaminated zone as a function of radioactive decay, the physical and chemical parameters of soil is presented. A distribution coefficient was also formulated which can be used to judge the suitability of a site for waste disposal. Moreover, a method for predicting contaminant concentration in groundwater at a site boundary is suggested for a heterogeneous media where the subsurface aquifer has different values of porosity, density, flow velocity, distribution coefficient and so on.

A general equation was also developed to predict the distribution of radionuclides resulting from the disposal of a solid waste material. The distributions of contamination was evaluated for ^{90}Sr and ^{239}Pu which obey a linear adsorption model and a first order kinetics respectively. These equations appear to have practical utility for easily estimating groundwater contamination.

KEY WORDS: radioactive waste disposal, subsurface aquifer, distribution coefficient, groundwater, site boundary, heterogeneous media, solid waste material, linear adsorption, first order kinetics

I 概 説

わが国における放射性廃棄物量は増加の一途にあり、低レベル廃棄物の海洋投棄処分についても投棄予定地近隣諸国の同意が得られていない現状である。放射性廃棄物の地層処分法は海洋処分法に比べて、わが国のような

陸地環境では一見して安全性が低いように考えられがちであるが、環境からの隔離を目的とした深地層処分法を除けば処分後のモニタリングを容易にかつ経済的に実施できる利点を有している。海洋処分法では海流の状況を把握することがその方向の非定常性および流速の大きいことから調査範囲が広大となるため困難であるのに対し、陸地処分法では地下水の流れは地表付近を除いてはほぼ定常状態に近いこと、平均的に地下水流速が遅いことおよび土壌による放射性物質の捕捉効果が大いことなどから調査領域を狭い範囲に限定できる可能性がある。そしてここに放射性廃棄物の陸地処分に関する研究の目的と意義とが影響評価の必要性とともに存在する。このような陸地処分法の手順は一般に次のようなものと考えられる。

^{*1} 京都大学原子炉実験所放射線管理部門; 大阪府泉南郡熊取町 (〒590-04)

Division of Radiation Control, Research Reactor Institute, Kyoto University; Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka, Japan.

^{*2} 放射線医学総合研究所環境放射生態学研究部; 茨城県那珂湊市磯崎町 (311-12)

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences; Isozaki 3609, Nakaminato, Ibaraki, Japan.

- (i) 廃棄物の処分形態 (液体, 固化体) と処分期間 (長期連続, 短期間けつ) および処分総量の想定
- (ii) 処分予定地の選定
- (iii) 予定地における水理, 地質学的調査
- (iv) 処分予定地層の土砂試料および地下水を用いた放射性核種の挙動に関する室内実験
- (v) 敷地境界における地下水汚染評価と被曝線量推定

放射性トレーサーもしくは実際に処分する放射性廃棄物を試験的に用いて処分予定地における放射性核種の挙動を検討することが困難である現状では, 流れ場としての地下水流動および放射性物質と土壌との吸着挙動特性とを独立に検討せざるを得ない。すなわち, 前者では非放射性物質を地下水トレーサーとして用いる方法, 地下水位測定, 揚水試験および地層の検定などの手法を用いて地下水の流速や方向を決定し, 後者では放射性廃棄物と地下水との接触により決定される水質 (共存塩濃度, pH など) 条件での放射性物質の吸着挙動を明らかにする必要がある。このような調査, 研究がなされた後, 実際の処分条件に応じた初期, 境界条件を流れ場および吸着モデル式に適用すれば陸地処分に基づく土壌地下水汚染の予測は原理的に可能である。しかしながらこれらの影響因子をすべて考慮した数理モデルの確立とその長期にわたる希薄濃度の予測は解析的には勿論のこと数値解法によっても容易ではない。そこで本研究では解析的な手法が適用できる, パラメーターの少ない吸着モデル式を用い, 放射性核種の特性である減衰および放射性核種が固化体である場合はその漏洩率などを考慮した条件を含めた数理モデルにより地下水汚染を評価した。この場合, 予測精度を第2義的なものとし, パラメーターは評価上安全側となるように用いた。また, 実際の処分の対象となる地層は帯水層ではなく通気層と考えられるが, 数十年から数百年の工学的貯蔵の間には施設の老朽化と不飽和水の浸透により放射性物質が帯水層へ漏洩することが予想される。そしてこの場合, 必ずしも廃棄物が回収可能な状態にあるとは考えられないため, 安全側評価のためにも帯水層処分を想定して汚染の程度を推定することも必要である。本研究ではこのような考えから, 廃液の場合は実際の処分法としてはわが国では社会的環境から困難と考えられるが保管中の廃液が事故的に帯水層に放出された場合などを含めて地下水を汚染した場合の評価を行う。そして固化体の場合についても実際にはパッケージとして保管されるものをその被覆効果を無視し, それが帯水層に直接埋設されたと仮定しての安全側評価およびその手法について述べる。

II 地下水汚染評価法

1. 放射性液体廃棄物連続注入処分形態

地層処分に際しては廃棄物を固化体として処分する方法が考えられるが, ここでははじめに液体として連続注入する悪条件を想定し, 地下水汚染を評価する。すなわち, 処分地点の地下水が一定濃度 C_0 となる処分条件を設定し, 放射性核種の減衰は地下水と混合され, 地層を流動する時点から始まるものとして取り扱う。この場合, 処分率 (unit/日) と地層内で崩壊する放射能の減衰率 (unit/日) が同量となれば, 地層内における土壌および地下水の放射能汚染が理論的に下流方向には進行しない放射性核種個有の区間 (以下, これを影響圏と記す) が現われることが推定される。

今, 地下水の間隙内平均流速を V , 分散係数を D とした時, 崩壊定数 λ の放射性核種の地下水中における流れの主軸方向の挙動を表わす基礎式はつぎのとおりである¹⁾。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V \frac{\partial C}{\partial x} - \frac{(1-p)r}{p} \frac{\partial Q}{\partial t} - \lambda C - \frac{(1-p)r}{p} \lambda Q \quad (1)$$

ここで,

Q, C : 固, 液相における放射性核種濃度

t, x : 廃液注入開始後経過時間および注入地点からの距離

p, r : 地層の間隙率および土粒子密度

D, V : 分散係数および間隙内地下水平均流速

λ : 崩壊定数

(1)式では分散および移流項とも主軸方向しか考慮していないが, これは評価上安全側の仮定であることが明らかである。

放射性核種と土壌との吸着モデルは従来多くの研究者により報告されているが, ここでは解析的に取り扱うことが可能であり, パラメーターを選定することにより安全側の評価が可能と考えられるヘンリー型および実際の土壌-溶質間反応において考えられる非可逆現象を対象とした一次反応式²⁾を複合した(2)式を, より適用範囲の広い吸着モデルとして用いる。

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = K_1 \frac{\partial C}{\partial t} + k_{11} C \quad (2)$$

ここで

K_1 : 分配係数

k_{11} : 一次反応速度定数

前述したような一定濃度を想定すれば陸地処分の初期、境界条件はつぎのとおりである。

$$\begin{aligned} C &= 0 & x > 0, & t = 0 \\ C &= C_0 & x = 0, & t > 0 \\ C &= 0 & x \rightarrow \infty, & t > 0 \end{aligned}$$

この条件のもとに(2)式を(1)式に代入し、それをラプラス変換法を用いて解けば、任意の時間 t 、距離 x における地下水中の放射性核種濃度は次式で表わされる。

$$C/C_0 = P(x, t)/2 \quad (3)$$

$$\begin{aligned} P(x, t) = & \exp\left\{-\frac{(U+\delta)x}{2D'}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\frac{x+\delta t}{2\sqrt{D't}}\right\} \\ & + \exp\left\{-\frac{(U-\delta)x}{2D'}\right\} \operatorname{erfc}\left\{\frac{x-\delta t}{2\sqrt{D't}}\right\} \end{aligned}$$

ここで

$$\delta = \sqrt{4D'(\lambda + k_{11}') + U^2}$$

$$k_{11}' = k_{11}/(\alpha' + K_1), \quad \alpha' = p/(1-p)r$$

$$D' = D/(1 + K_1/\alpha'), \quad U = V/(1 + K_1/\alpha')$$

2. 放射性液体廃棄物矩形波状注入処分形態

DAVIDSON³⁾ および LAI⁴⁾ はヘンリー型の吸着式のみを用いてカチオンや殺虫剤の土壌汚染を検討し、MIRSA⁵⁾ は一次反応型のみ吸着モデル式を用いて硝酸性窒素および塩素イオンの土壌カラム内での挙動を検討している。そして、本研究ではこれらの2つのモデルを複合した(2)式を用い、さらに(1)式に示されているように崩壊項をも含んだ数理モデルに対して下記のような矩形波状の流入境界条件における放射性核種の地下水濃度式として(4)式を得た。

$$\begin{aligned} C &= 0 & x &= 0 & t > T \\ C &= 0 & x &> 0 & t = 0 \\ C &= C_0 & x &= 0 & 0 < t < T \end{aligned}$$

$$\frac{C}{C_0} = \frac{1}{2} [P(x, t) - P(x, t-T)] \quad (4)$$

$$t > T$$

(4)式は MIRSA⁵⁾ の矩形形状条件の解と基本的には類似しているが、上述した意味において異なるものである。

3. 放射性固化体投棄処分形態

放射性廃棄物は一般に上述したような液体状としてよりもその取り扱いの容易さおよび環境への拡散を抑制する目的から固化体として処分される場合が多い。そこでここでは円柱状の固化体を想定し、その漏洩率および放射性核種の崩壊定数を考慮した地下水汚染を推定する解析解を導く。この場合、初期の固化体内蔵量を M_0 、処分後任意時間における内蔵量を M とすれば IAEA がその

暫定指針で提案した積算浸出比⁶⁾は $(M_0 - M)/M_0$ に相当し、これが $\sqrt{t}$ に比例するとしている。しかしながら、この式の妥当性はごく初期(高々数十日間)には成立することがセメント固化体の場合に室内試験により確かめられている^{7,8)} もの、それ以上の期間では補正係数が必要なこと、およびさらに長期になれば積算浸出比が本質的には1以下であることと $\sqrt{t}$ に比例することとが矛盾することは明らかである。したがって、ここでは浸出に応じて固化体内での濃度が一樣になるとする仮定には相当しないが、浸出の長期的な過程を考慮して、漏洩率 $(-dM/dt)$ が内蔵量に比例する⁹⁾ とした仮定を用いる。この時、固化体内の内蔵量および浸出率はそれぞれ(5)、(6)式で表わされ、固化体の漏洩率は(6)式中の比例定数として定義される。

$$M = M_0 \exp\{-(\lambda + \eta)t\} \quad (5)$$

$$-dM/dt = \eta M \quad (6)$$

ここで、 η : 固化体からの放射性核種の漏洩率

さて、微小時間 dt に漏洩した放射性物質質量 dM が、その間に固化体(直径 d 、長さ L) 断面($d \times L$) を通過する地下水量で希釈され、それを投棄地点における地下水中の流入境界濃度 (C_i) と考えればそれは次式で表わされる。

$$C_i = dM/p \cdot V \cdot d \cdot L \cdot dt \quad (7)$$

(7)式に(5)、(6)式を代入し、初期における固化体中放射性物質濃度 (C_s) が $4M_0/(\pi d^2 L)$ であることを考慮すれば C_s に対して無次元化された地下水中の境界濃度 C_i が次式のように表わされる。

$$\frac{C_i}{C_s} = \frac{\eta \pi d \cdot \exp\{-(\lambda + \eta)t\}}{4 p V} \quad (8)$$

結局、(8)式を境界条件として(1)、(2)式を解けば、固化体処分後における地下水中の濃度分布が(9)式として得られる。

$$\begin{aligned} \frac{C(x, t)}{C_s} = & \frac{\eta \pi d \exp\{-(\lambda + \eta)t\}}{4 p V} \left[\exp\left\{\frac{Ux}{2D'}\right\} \right. \\ & + x \sqrt{\frac{\mu + k_{11}' - \eta}{D'}} \operatorname{erfc}\left\{\frac{x}{2\sqrt{D't}}\right\} \\ & + \sqrt{(\mu + k_{11}' - \eta)t} \Big\} + \exp\left\{-\frac{Ux}{2D'}\right\} \\ & - x \sqrt{\frac{\mu + k_{11}' - \eta}{D'}} \operatorname{erfc}\left\{\frac{x}{2\sqrt{D't}}\right\} \\ & \left. - \sqrt{(\mu + k_{11}' - \eta)t} \Big\} \right] \quad (9) \end{aligned}$$

ここで、

$$\mu = U^2/4D'$$

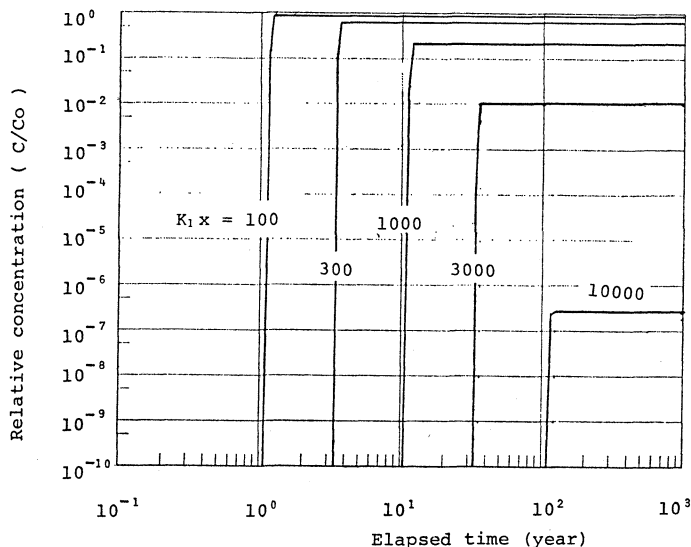


Fig. 1 Breakthrough curves of ^{60}Co in groundwater due to the continuous injection of liquid waste with parameters of K_1x .

III 評価結果および考察

本研究では処分地層を放射性核種がフードチェーンに入りやすいような評価上安全側の想定を設けるために浅層地下帯水層と仮定する。このような地層は一般に後期新世代層または第4系の地層であり、粘土層や砂層が互層を形成している。そこで、以下の評価に用いるパラメータのうち、地下水流速や分配係数など評価上重要と考えられるものは大阪層群¹⁰⁾と呼ばれるわが国にその関連する地層が広く分布し、重要な標準層となっている地層において野外調査およびその土砂試料を用いた室内実験結果を参考にして用いた。すなわち、地下水流速は Br^- をトレーサーとする追跡調査¹¹⁾から決定したものを、放射性廃液を直接注入処分する場合には流速が大きくなるためその約2倍と想定し、 0.864 m/日 ($1 \times 10^{-3} \text{ cm/秒}$) として用いる。また、分配係数は大阪層群の地表から約30 cm 深さで採取した土砂(細砂)を未処理の状態での採取地点の浅層地下水と接触させて求めた値¹²⁾ (^{60}Co : 4,200, ^{137}Cs : 4,500, ^{90}Sr : $105 \text{ cm}^3/\text{g}$) をさらに小さく仮定 (^{60}Co : 2,000, ^{137}Cs : 4,000, ^{90}Sr : $50 \text{ cm}^3/\text{g}$) して用いる。評価に際してあまり大きい影響をおよぼさない定数 (D/V 値, 間隙率および密度など) については豊浦標準砂を用いてカラム実験を行なった場合の値を採用した。

以下では II. に述べた放射性廃棄物の処分形態に従って地下水汚染評価を行なう。

1. 放射性液体廃棄物長期連続注入処分

一般に分配係数は吸着側の固-液相濃度比として求められるが、いったん吸着された放射性核種が脱離され難いことを考慮すれば(2)式において $k_{11}=0$ すなわち可逆なヘンリー型の吸着等温式をモデルとして採用することが評価上安全側となることは容易に推定される。従って、 ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co などの放射性核種に対しては本研究では解析解として非可逆反応をも考慮した(3)式を得ているが、 $k_{11}=0$ とする。いま、放射性廃棄物に含有されるおもな放射性核種を ^{60}Co と想定し、その廃液を連続的に浅層地下水中へ処分した場合のある距離 $x \text{ m}$ での地下水中濃度は(3)式から Fig. 1 のようになる。この図では分配係数 K_1 と任意距離 x との積 K_1x をパラメータとして計算した。また、ここで用いられた他の定数は次のとおりである。

$$V = 0.864 (\text{m/日}), \quad D/V = 1 \times 10^{-3} (\text{m}), \quad p = 0.42, \\ \gamma = 2.62 (\text{g/cm}^3), \quad \lambda = 3.6 \times 10^{-4} (\text{1/日})$$

この図によれば K_1x が大きくなるにつれて、その地点に濃度フロントが到達する時間が長く、また検出される濃度 (C/C_0) も低いことが判る。さらに、境界濃度を C_0 と一定に保っているにもかかわらず、流下地点における濃度 (C/C_0) が1に漸近しない。この現象が放射性核種の減衰効果であることは明らかである。すなわち、(3)式において $t \rightarrow \infty$ とした場合に誘導される(10)式の定常解により求められる地下水中の濃度分布はおもに分配係数 K_1 と処分地点からの距離 x により決定される。

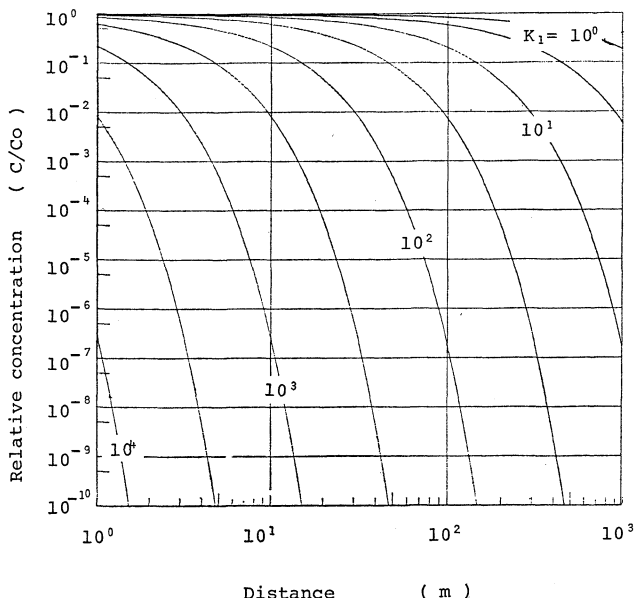


Fig. 2 Concentration profiles of ^{60}Co in groundwater for various values of the distribution coefficient after the steady state of the adsorption was established.

$$\frac{C}{C_0} = \exp \left\{ -\frac{(U-\delta)x}{2D'} \right\} \quad (10)$$

すなわち、(3)式において処分後の時間 t をパラメータとして得られる地下水中の濃度分布は $t \rightarrow \infty$ とすることにより1つの曲線(定常解)に漸近する。このような定常解は主として分配係数 K_1 により変化するため K_1 を $1 \sim 10^4 \text{ cm}^3/\text{g}$ と変えた場合の ^{60}Co の地下水中濃度分布をFig. 2に掲げる。この図によれば $K_1 = 2,000 (\text{cm}^3/\text{g})$ と仮定した実測値よりも小さい分配係数の ^{60}Co に対して、処分地点の濃度 (C_0) が10桁以上小さくなる距離は10m未満であることがわかる。このようにして ^{137}Cs , ^{90}Sr についても評価した結果は、 ^{137}Cs では20m, ^{90}Sr では1.7kmとなった。したがって、主としてイオン状態で地下水中を流動する放射性核種のうち、半減期が数十年以下のものでは ^{90}Sr に着目する必要があることが定量的に明らかにされた。したがって、廃液処理に際しては特に ^{90}Sr の除去を重点的に行うことが必要である。また、処分に際しては地下水中で炭酸塩や水酸化物などの化学形態で溶存させ、みかけ上の分配係数値を高める処分法もしくはその反応を期待できる地層の選定も効率的である。この場合、分配係数を $100 \sim 1,000 \text{ cm}^3/\text{g}$ と大きくすることが可能であれば上述したような ^{90}Sr の流入濃度を10桁低下させるのに必要な地層の距離は800~80mと短くなることがわかり、このこ

とはわが国のような地理的環境でも処分場を選定することが容易になることを示唆している。

前述した(10)式はそれを他のパラメータをexplicitに表わすように変換することによって、より有用な公式が得られる。はじめに吸着等温式をヘンリー型とし、(10)式を K_1 に関して変換すれば(11)式を得る。

$$K_1 = \alpha' \frac{V}{\lambda} \left[\frac{D}{V} \left\{ \frac{\ln(C/C_0)}{x} \right\}^2 - \left\{ \frac{\ln(C/C_0)}{x} \right\} - \frac{\lambda}{V} \right] \quad (11)$$

(11)式の右辺に含まれる $\alpha' (=p/(1-p)r)$ および D/V 値は対象とする地層の物理的な定数として決定される。そして右辺は放射性液体廃棄物の処分地点から x の距離における敷地境界において、流入濃度 C_0 が C に低減されるための物理的に必要な条件値であることを示しており、この場合のパラメータは V/λ である。すなわち、左辺の化学的に決定される独立した定数が右辺の物理的定数よりも大きければ所定の低減率 C/C_0 がその地層において達成され得ることを意味している。したがって、(11)式は液体廃棄物の処分地点の地下水濃度 C_0 を敷地距離 x において目的とする濃度 C に低減させるため必要な敷地地層の物理、化学的な条件を判定するための簡便な評価式として用いることが可能である。ちなみに、吸着モデルが主として非可逆的な一次反応式で表わ

される場合には(2)式において $K_1=0$ とし, (10)式を k_{11} について変換すれば(11)式と類似した(12)式が得られる。

$$k_{11} = \alpha' \frac{V}{\lambda} \left[\frac{D}{V} \left\{ \frac{\ln(C/C_0)}{x} \right\}^2 - \left\{ \frac{\ln(C/C_0)}{x} \right\} - \frac{\lambda}{V} \right] \lambda \quad (12)$$

(12)式右辺は(11)式を λ 倍したものである。したがって V/λ をパラメータとして $\{\ln(C/C_0)/x$ に対する(11)式をあらかじめ計算し, 図式化しておけば¹¹⁾ α' , D/V がほぼ定数とみなせることから, 対象とする地層に要求される K_1 もしくは k_{11} を図式的に決定でき, その安全性を簡便に判定することが可能となる。

つぎに(10)式を距離 x に関して変換すれば(13)式を得る。

$$x = \frac{U}{2\lambda} \left(\sqrt{4 \frac{D}{V} \cdot \frac{\lambda}{U} + 1} + 1 \right) \ln \frac{C_0}{C} \quad (13)$$

(13)式は対象とする放射性核種の半減期が長く, $4D\lambda/VU$ が1にくらべて十分に小さい場合は次式のようさらに簡単に表わされる。

$$x = \frac{U}{\lambda} \cdot \ln \frac{C_0}{C} \quad (14)$$

(13)式は II. 1 に述べた, 液体廃棄物を連続的に注入処分してもそれ以上汚染圏が拡大しない影響圏の範囲を示す公式である。いま, ^{239}Pu を想定して影響圏を試算する。 ^{239}Pu はその電荷が3~6価であるが, 地下水中で遊離したイオン状となることは少なく, CO_3^{2-} , SO_4^{2-} , Cl^- などの陰イオンと結合し, 様々な溶存形態を示すことが知られている。そして土壌との分配係数はそれぞれの存在形態により異なる値を有することも, 非可逆反応の可能性をも含めて考えられる。ここでの試算は砂岩に対する分配係数 ($K_1=2,000 \text{ cm}^3/\text{g}$)¹³⁾ を用いて, C/C_0 が $10^{-10} \sim 10^{-20}$ となるような影響圏を(14)式から推定した。その結果, 37 km ($C/C_0=10^{-10}$) ~ 73 km ($C/C_0=10^{-20}$) となり, わが国のような環境ではその処分方式が不可能に近いことがわかる。また, 粘土層 ($K_1=10^4 \text{ cm}^3/\text{g}$)¹³⁾ に対しては 7.4 km ($C/C_0=10^{-10}$) ~ 15 km ($C/C_0=10^{-20}$) と推定される。

上述した一連の解析においては V , p , r などの物理的定数および K_1 などの化学的定数を一定とみなしたように, 均質な地層を対象としたものであった。しかしながら, (10)式の定常解は場所的に物理, 化学的定数が変動する不均質な地層に対しても適用することが可能である。すなわち, 処分地点が地表から数十mも深ければ雨

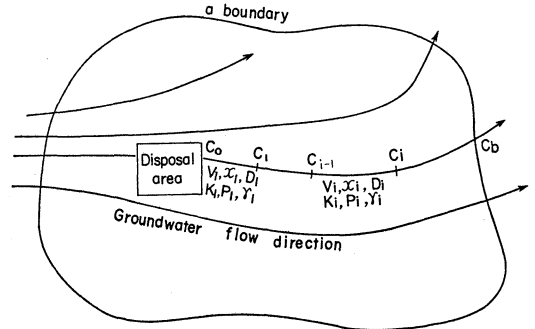


Fig. 3 A typical procedure for dividing the disposal area where the geologic media is heterogeneous, to predict the contaminant concentration C_b at a boundary of a site.

水の浸透現象が直接地下水流動に大きな影響をおよぼすことは少なく, 流れ場は不定流(場所的に流速は変るが時間的には不変)と考えられる。そこで, 他の定数も含めて対象とする地層を Fig. 3 に示すようにこれらの定数を一定と考えられる範囲に区分すれば不均質な地層における境界上の地下水中濃度は次のように求められる。

$$\frac{C_b}{C_0} = \frac{C_1}{C_0} \times \frac{C_2}{C_1} \times \dots \times \frac{C_i}{C_{i-1}} \times \dots \times \frac{C_{b-1}}{C_{b-2}} \times \frac{C_b}{C_{b-1}} \quad (15)$$

結局, (10), (15)式より

$$C_b = C_0 \prod_{i=1}^{b-1} [\exp\{(U_i - \delta_i)x_i/2D_i'\}] \quad (16)$$

ここで, C_b は敷地境界線上の地下水中濃度, U_i , δ_i , x_i および D_i' は区分された区間 i において決定される定数である。(16)式は放射性廃棄物の陸地処分に際して多くの水理, 地質学的調査により物理, 化学的定数が決定されなければならないことを示唆している。このような調査は本研究で述べたような解析的手法にのみ必要とされるのではなく, 数値解法を用いる場合^{14,15)}にもインプットデータとして必要となるものであり, 処分の事前評価には不可欠のものである。(16)式を敷地内における地下水の流れに沿って計算すれば, 処分地点から境界までのクリティカルパスを容易に決定することが可能である。

2. 放射性液体廃棄物短期間けつ注入処分

III. 1 は廃液の長期連続注入処分という最も厳しい条件で評価を行なったが, ここでは注入処分を一定の期間継続した後, 停止する条件で地下水汚染を評価する。対

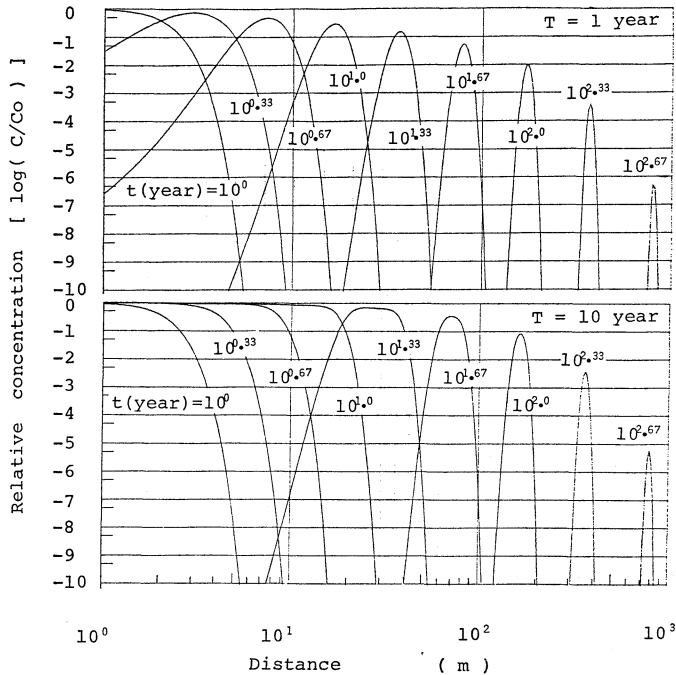


Fig. 4 Concentration profiles of ^{90}Sr in groundwater at progressive times after the one and ten years injection of liquid waste.

象とする放射性核種は ^{90}Sr ($K_1=50 \text{ cm}^3/\text{g}$) とし、パラメータは前述した値と同じである。Fig. 4 には注入処分を1年および10年間とした場合のその後の地下水汚染分布の進行を(4)式から算定した結果を示す。これによれば分配係数が同じであることから前フロントの移動速度はその処分期間に関係なく同じであることは明らかであるが、地下水中濃度のピーク値も高々1桁程度しか変わらない。それは、ここで用いた D/V 値¹⁶⁾が豊浦標準砂を用いたカラム実験結果から得られたものを用いたことによるが、実地層では砂礫またはレンズ状に粘土などの不透水層が帯水層内に挟在するため実際にはより大きい値を用いる必要があると考えられる。この場合は間けつ状の処分形態に分散効果を示す精度の高い D/V 値を用いることによりピーク濃度を評価する必要がある。Fig. 4 では敷地境界までの距離が300~400 m 程度の場合、10年間廃液を処分すれば C/C_0 は2桁程度しか低減されず、10桁程度の低減を目的とすれば、連続注入の場合と同様に所要距離 (land demand) は1.5 km 程度必要と考えられる。すなわち、矩形波状として処分する利点は特にみられないことがわかる。

3. 固化体投棄処分

放射性廃液を固化体として処分する利点はその取り扱い

いが容易であることおよび溶出までの減衰が期待できることなどであることは前述したが、その減衰の効果を漏洩率と関連させて固化体処分による地下水汚染を評価した研究はない。本研究では(9)式において、固化体から漏洩する放射性核種の地下水中濃度分布を推定する評価式を誘導した。そこで、ここでは直径 50 cm、長さ 1 m の円筒状固化体中に内蔵した ^{90}Sr ($M_0=20 \text{ Ci}$, $C_s=100 \text{ Ci}/\text{m}^3$) の漏洩率 η を 10^{-1} , 10^{-2} , 10^{-3} および 10^{-4} (1/年) とした4種の場合に対して(9)式から地下水中濃度分布を計算した。計算に用いたパラメータは前述したものと同じであり、境界条件が異なるだけである。その結果を Fig. 5 に掲げる。これによれば、 η が0.1と大きい場合は減衰の効果が現われる前に固化体から地下水中へ漏洩する量が多くなるため、III. 2の間けつ状に廃液を注入処分した場合の地下水中濃度分布と類似した形状を示している。そしてピーク濃度は約300~400 m の範囲に $10^{2.33}$ (214) 年後において現われるものが、初期に処分地点近辺の地下水中に現われたものにくらべて約2桁低いにすぎない。すなわち、この程度の漏洩率を有する固化体については、漏洩を抑制する効果がないといえる。そして η を次第に小さくするにつれて間けつ状処分形態にみられた三角波状の濃度分布がみられなく

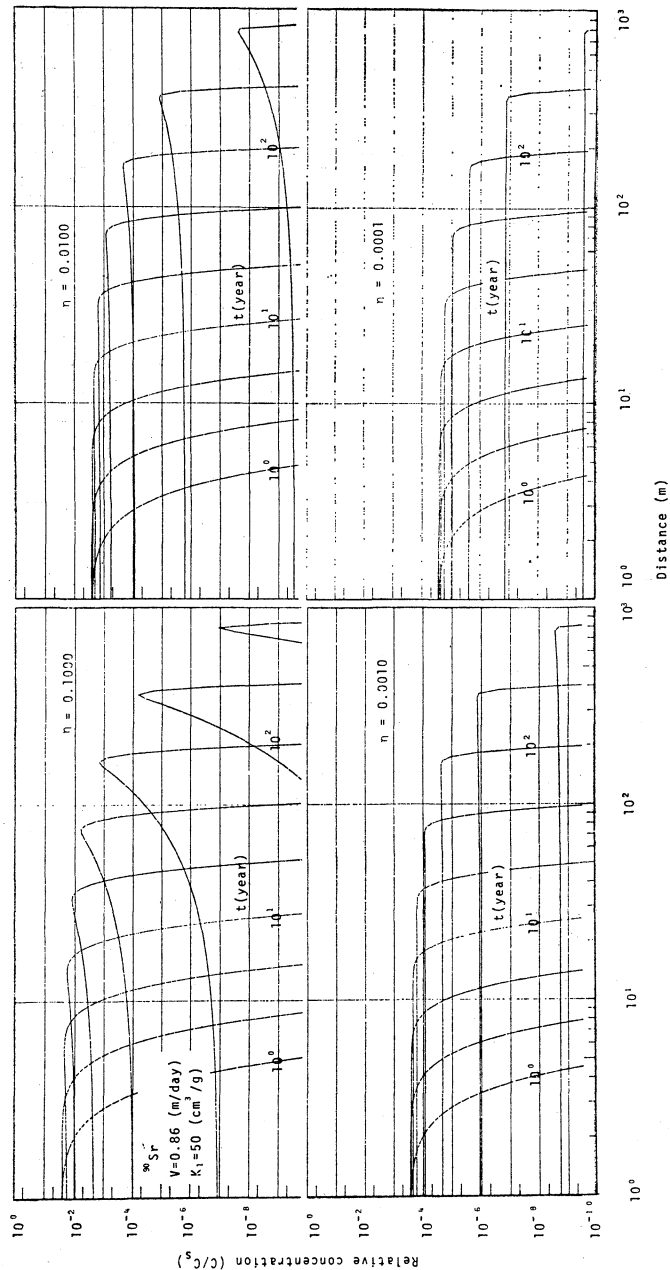


Fig. 5 Concentration profiles of ^{90}Sr which leaked from a cylindrical solid material ($M_0 = 20$ Ci), calculated for 4 leak rate constants of the material.

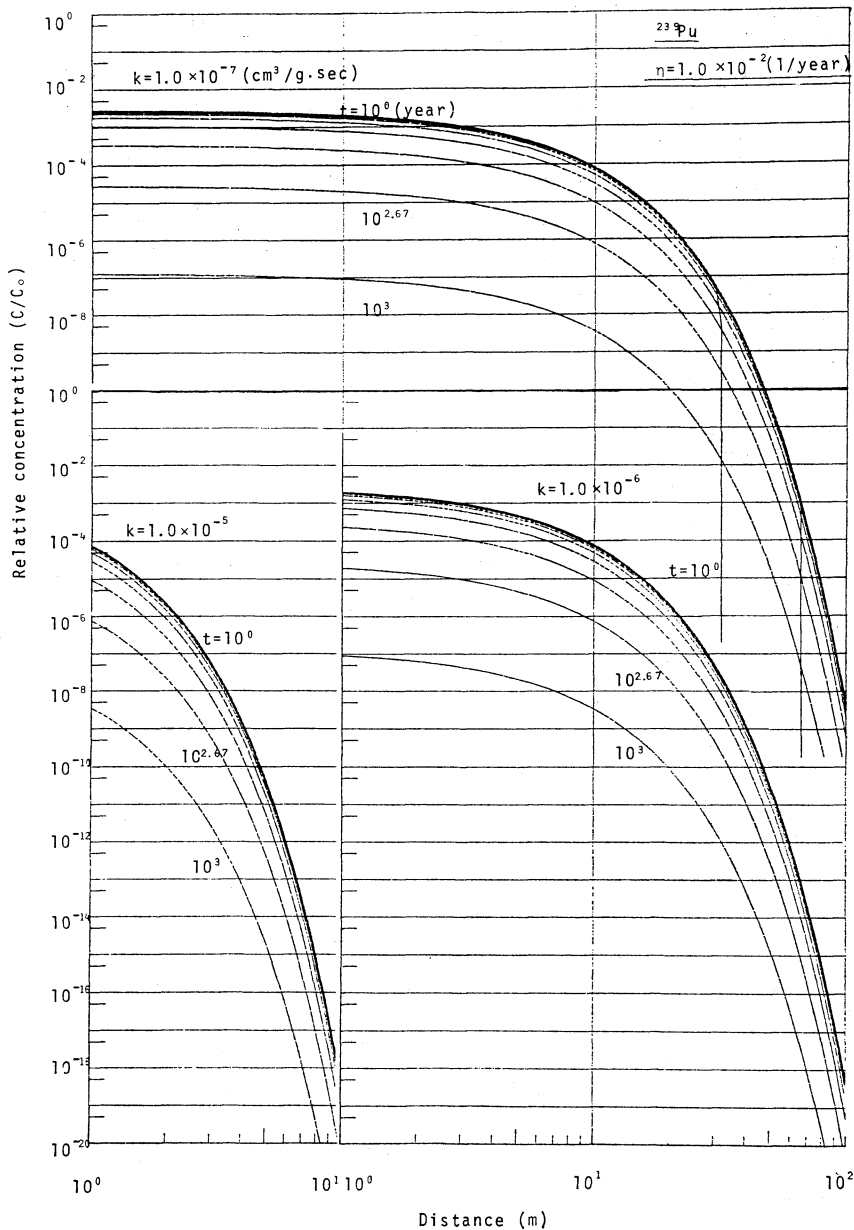


Fig. 6 Concentration profiles of ^{239}Pu which leaked from a cylindrical solid material ($M_0=20\text{ Ci}$), calculated for 3 rate constants.

なり、 η が 10^{-3} 以下では η を 1 桁下げれば地下水中濃度分布もその距離全般について 1 桁下がるのがわかる。したがって、その濃度分布に三角波状の形状が現われない漏洩率、すなわち η が 10^{-3} 以下では固化により減衰効果が期待できることがわかる。固化体からの放射性核種の漏洩率は通常、固化体構成剤の溶解作用を主と

して考慮するため、 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ なる単位が使用されている。そこで、ここで想定している固化体をアスファルト固化体 ($d=50\text{ cm}$, $L=1\text{ m}$, 比重 2) とすればこの漏洩率は $10^{-4}\sim 10^{-5}\text{ g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ であるため、これは本研究で用いている η としては $2\times(10^{-9}\sim 10^{-10})\text{ year}^{-1}$ に換算される。そこで Fig. 5 に掲げた $\eta=10^{-4}$ の図が

ら敷地境界上の地下水中濃度 (C_b) がたとえば 3×10^{-8} $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となるような初期埋設量 (M_0), 処分地点から敷地境界までの距離 (x), 所要モニタリング期間 (t) などを推定すれば以下のような組合せが考えられる。

$\eta(\text{year}^{-1})$	$M_0(\text{Ci})$	$x(\text{m})$	$t(\text{year})$	$C_b(\text{Ci}/\text{m}^3)$
10^{-4}	2×10^1	8×10^2	$10^{2.67}(468)$	3×10^{-8}
10^{-8}	2×10^1	2×10^2	10^2	3×10^{-8}
10^{-8}	2×10^5	8×10^2	$10^{2.67}$	3×10^{-8}

このように漏洩率を 10^{-4} から 10^{-8} と小さくすることにより処分量 M_0 が同じ場合は敷地境界までの距離 x を $1/4$, モニタリング必要期間 t を $1/4.68$ と短縮でき, x および t を同じ条件にすれば M_0 を 10^4 倍とすることが可能であり, 固化体処分法の有効性が定量的に明らかにされた。固化体は一般的にドラム缶などにより防護されるが, 前述した ^{90}Sr の場合は, その耐用年数を 100 年程度と仮定しても地下水中の濃度は約 1 桁低下するにすぎない。III. 1 では(14)式を ^{239}Pu に適用して影響圏を試算したが, プルトニウムについては酸化還元反応, 沈殿形成, 過作用など物理化学的な挙動を究明するための研究が現在なされている現状であり, その挙動が必ずしも単純なイオン交換反応では表わされないことが指摘されている¹⁸⁾。そこで, プルトニウムの中における溶存形態のうち, 一部は III. 1 に述べた分配係数で表わされるもの, そして他の一部は(2)式に表わしたような土砂に非可逆的に吸着されるものと考え, 後者についてここでは試算を行なう。すなわち, 前述した ^{90}Sr とすべて同じ条件で固化体中に内蔵された, 土壌との反応が一次反応式に従う ^{239}Pu の地下水中濃度分布を Fig. 6 に掲げる。この図は固化体からの漏洩率を $\eta=10^{-2}$ (1/year) と一定にし, 反応速度定数を 10^{-7} , 10^{-6} および 10^{-5} $\text{cm}^3/\text{g} \cdot \text{sec}$ とした場合の結果である。この場合は速度定数 k が大きくなるにつれて地下水中濃度フロントの流下方向への進行が遅くなることがわかる。

そして地下水中濃度は減衰効果よりも水中から土砂への ^{239}Pu の移行により減少する。

以上, III. 1, 3 ではプルトニウムについて言及したが, 実験的手法により溶存形態ごとの定数を求め, それらの地下水中における吸着モデルを重ね合わせる方法で挙動のモデル化が可能であると考えられる。しかしながら超ウラン元素については減衰効果が期待できないことから, それがおもに非可逆的な吸着モデルで表わせない場合, 環境へのフィードバックが考えられる処分法は適当ではない。

IV 結 語

本研究では低レベルの放射性廃棄物(液体, 固化体)を比較的浅層の地下帯水層へ処分する場合, その地下水汚染を簡単にかつ安全側で評価する方法およびその評価結果の一例を示した。この場合, 処分地はわが国にその関連する地層が広く分布している標準層となっている大阪層群を調査した結果として得られた地下水流速や分配係数を用いて評価した。

始めに, このような評価に際しては対象とする地域の地層に関する水理, 地質調査が不可欠であること, 評価に用いるモデルのパラメータを安全側となるように用いる必要性を述べた。つぎに放射性液体廃棄物を連続に地層に注入処分した場合, 半減期が数十年以下の核種では ^{90}Sr がクリティカルであり, 流入濃度を 10 桁まで低減させるには 1.7 km 程の距離が影響圏となることを示した。そして ^{137}Cs , ^{60}Co などはそれが数十 m 以内であることがわかった。このように廃液を連続的に注入処分する場合, 流入濃度 C_0 を境界上での濃度 C_b に低下させるために地層に必要とされる分配係数を算定する評価式および影響圏を評価する式を誘導した。さらに, 地層のパラメータや地下水流速および分配係数などが場所ごとに分布するような不均質な地層に対しても流入濃度 C_0 から敷地境界上の地下水中濃度 C_b を推定する方法を提案した。また, 連続ではなく, 注入処分期間を有限とした場合の地下水汚染を推定する式も提案した。

最後に, 固化体を地層に処分した場合の境界条件で地下水中濃度分布を表わす数式を誘導し, おもに ^{90}Sr について固化体漏洩率と地下水中濃度の関係を考察した。その結果, 漏洩率が 10^{-3} 1/year 以上では固化による減衰の効果が期待できないことから, それ以下の漏洩率を有する固化体として処分する必要があることが判明した。

本研究で述べた以上の手法は地下水汚染の目安を order estimate することが目的であり, 実際の処分に際しては地下水中での放射性核種の挙動に関するより詳細な物理, 化学的特性の研究やそのモデル化に関する研究などがより精度の高い評価を行なうために残された研究課題であると考えられる。

参 考 文 献

- 1) Ch. MADDOZ-ESCANDE and J-Ch. PEYRUS; "The Migration of Long-lived Radionuclides in the Geosphere," p. 109 (1979), OECD, Bruxelles.

- 2) J. ROCHON, D. RANCON and J. P. GOURMEL; Preprint for the International Symposium on the Underground Disposal of Radioactive Wastes, IAEA-SM-243/155, p. 17, Helsinki (1979).
- 3) J. M. DAVIDSON and R. K. CHANG; *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.*, **36**, 257 (1972).
- 4) S. H. LAI and J. J. JURINAK; *ibid.*, **36**, 730 (1972).
- 5) C. MIRSA and B. K. MISHRA; *ibid.*, **41**, 496 (1977).
- 6) IAEA; Technical Report Series No.82, p. 101 (1968).
- 7) 関 晋他; 原子力誌, **20**, 887 (1978).
- 8) 松鶴秀夫; NIRS-31, p. 50 (1978).
- 9) J. J. DINUSSO, R. E. BAKER, *et al.*; TID-14844 (1962).
- 10) 松下 進; “日本地方地質誌, 近畿地方”, p. 200 (1971), 朝倉書店, 東京.
- 11) 福井正美; NIRS-31, p. 74 (1978).
- 12) 桂山幸典, 福井正美; 昭和 53 年度文部省科学研究費総合研究 (A) No. 338029 報告書, p. 5 (1979).
- 13) J. HAMSTRA and B. VERKERK; IAEA-CN-36/289, p. 467, Salzburg (1977).
- 14) F. W. J. SCHWARTZ; *J. Hydrol.*, **27**, 51 (1975).
- 15) M. REEVES and J. D. DUGUID; ORNL-4927 (1975).
- 16) M. FUKUI and K. KATSURAYAMA; *Health Phys.*, **28**, 717 (1975).
- 17) W. BAHR, *et al.*; IAEA-SM-207/81, p. 133 (1976).
- 18) F. GIRARDI, *et al.*; Preprint for the International Symp. on the Underground Disposal of Radioactive Wastes, IAEA-SM-243/161, Helsinki (1979).