

京大.工 正員 岩井重久 井上稔輝 ○ 青島 泰

放射性廃棄物がある種の固化剤によって固化した場合、廃液中の放射性核種や各種の塩は、固化剤の成分と物理化学的に結びついて、あるいは単独の結晶として固化体中に分散した状態で存在する。こゝろが海水に接触すると、海水中化学成分との反応や解離を生じ、溶離性の物質は速やかに移行する。このような現象は、固化体が均質なものであれば固化体表面のみにおいて生ずるが、固化体が多孔質であって海水の浸透を許すものであれば、固化体表面、内部空隙において起り、内部空隙の溶離成分は拡散によって外部へ溶出する。今回はこれに、このような溶離、溶出の機構について考察を加えた。

(1) 非多孔性固化体表面における放射性核種の溶離

固化体内部の放射性核種が、固化剤の成分と結合した状態で存在する場合ももちろん、単独結晶として均一に分散している場合においても、表面における長期的な溶離を対象とすると、放射性核種が界面の溶液へ移行する速度は、固化体の母材である物質の溶離速度と比例する。放射性核種が固化剤と結合状態になく、固化体の表面に溶出していった場合には適合しないが、このようなものの溶離はごく短期間に終了する。さて、問題となるのは固化体母材が解離性に富み、あるいは、海水成分との反応によって解離性の物質を形成する場合である。つまり固相から界面溶液への移行の速度が、界面からの脱離速度より大で、界面が飽和状態に保持される場合である。このような場合の物質移動は、巨視的に境界層を仮定し、Fickの法則を適用して取りあつかうことができる。この飽和状態にある界面での放射性物質濃度を C_i 、境界層外の濃度は海水の流動によって常に保たれとすれば、溶離速度 N は(1)式、溶離量 M は(2)式のように示される。 δ は物質移動係数(溶出係数と呼ぶ)、 D は拡

$$N = D \frac{C_i e^{-\lambda t}}{\delta} = \alpha C_i e^{-\lambda t} \dots (1) \quad M = \alpha C_i \int_0^t e^{-\lambda t} dt \dots (2) \quad C = C_i [1 - \exp(-\frac{\alpha S}{V} t)] \dots (3)$$

散係数、 δ は境界層厚、 S は表面積、 λ は放射性核種の減衰係数($=\frac{0.693}{T}$)である。 α および C_i は、表面 S の固化体を小体積 V の海水に浸漬した場合の、核種の減衰が無視であるような時間内での濃度変化(3)から求めることができる。つぎに、固化体母材が比較的、化学的耐久性があり、界面における海水成分との反応速度が溶離を律速する場合の N 、 M は、(1)、(2)式において C_i を固化体内濃度 C に、 α を反応速度に関する係数 α' におきかえて表わすことができる。

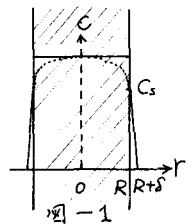
(2) 多孔性固化体中放射性核種の拡散溶出

固化体が多孔体であり、固化体表面における溶離の速度が小さく、固化体内空隙を通じての拡散が外部への溶出を律速する。まず固化体が円柱体であり、その側面から放射性核種の拡散溶出が起る場合を考慮しよう。拡散の基礎式は円柱座標で(4)式のように示されるが、図-1

のように座標軸をとり、固化体外部の海水は流動していること

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (D r \frac{\partial C}{\partial r}) - \lambda C \dots (4)$$

$$C(r, 0) = C_0 \quad 0 \leq r \leq R \dots (5) \quad D \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R} = -\frac{D}{\delta} C(R, t) = -\alpha C \dots (6) \quad \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0 \dots (7)$$



を考慮すると、初期、境界条件はそれぞれ(5)、(6)、(7)のようにならされる。こゝの条件のもとで(4)を Laplace 変換法により解くと、固相内部の濃度は(8)式のように求まる。

$$\frac{C}{C_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2k J_0(\beta_n R)}{(\beta_n^2 + k^2) J_0(\beta_n R)} e^{-\left(\frac{D_1 \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t} \quad \left. \begin{array}{l} \beta_n ; \beta J_1(\beta) - k J_0(\beta) = 0 \text{ の根, } k = \frac{\alpha R}{D_1} \\ J_0, J_1 ; \text{第1種0次, 1次の Bessel 函数} \end{array} \right\} \quad (9)$$

また、表面における拡散放出速度 N 、放出量の初期量に対する比は、(10)、(11)式のように求まる。

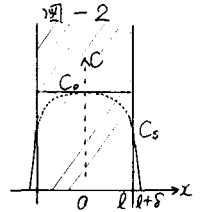
$$N(R, t) = -D_1 \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R} = \alpha C_0 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2C_0 D_1 k^2}{R(\beta_n^2 + k^2)} e^{-\left(\frac{D_1 \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t} \quad (10) \quad \frac{M_t}{M_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4 \left[1 - e^{-\left(\frac{D_1 \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t} \right]}{(\beta_n^2 k^2 + 1) \chi \beta_n^2 R^2 / D_1} \quad (11)$$

つぎに、直方体、あるいは円柱体の形状を有する固相体の相対する2面、または1面より拡散放出が起る場合は、基礎式は(12)のようにならされるが、これを初期、境界条件

$$(13) \sim (15) \text{ のもとで解くと、固相体 } \frac{\partial C}{\partial t} = D_1 \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C \quad (12)$$

内濃度、表面での拡散放出速度、

$$C(x, 0) = C_0, |x| \leq l \quad (13) \quad D_1 \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=l} = -\frac{D_1}{f} C(l, t) = -\alpha C_s \quad (14) \quad \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} = 0 \quad (15)$$



はそれぞれ(16)、(17)式で、また放出量の割合は、両面からの放出の場合には(18)式で示され、片面の場合は1/2となる。

$$\frac{C}{C_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2k \cos(\beta_n \frac{x}{l})}{(k^2 + k^2 + \beta_n^2) \cos \beta_n l} e^{-\left(\frac{D_1 \beta_n^2}{l^2} + \lambda\right)t} \quad \left. \begin{array}{l} \beta_n ; \beta \tan \beta = k \text{ の正根} \\ k = \frac{\alpha l}{D_1} \end{array} \right\} \quad (16)$$

$$N(l, t) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2C_0 D_1 k^2}{l(k^2 + k^2 + \beta_n^2)} e^{-\left(\frac{D_1 \beta_n^2}{l^2} + \lambda\right)t} \quad (17) \quad \frac{M_t}{M_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2D_1 k^2 \left[1 - e^{-\left(\frac{D_1 \beta_n^2}{l^2} + \lambda\right)t} \right]}{l(k^2 + k^2 + \beta_n^2)} \quad (18)$$

(3) 円柱状固相体中 ^{90}Sr , ^{137}Cs の拡散放出解析例 溶融体濃度については、再処理廃液セメント固相体中 ^{90}Sr , ^{137}Cs の表面溶融実験によれば、すべてに報告1.2とよく $6 \times 10^6 \sim 10^5$ 等の値が得られている。他方、液中分子拡散係数 D は通常 $10^5 \sim 10^6$ 等であり、境界厚 δ は、外部の流速条件に依るが、Nernst に依る値、 $10^2 \sim 10^4$ cm を採用してあげると、 $\alpha = D/\delta$ は $10^4 \sim 10^6$ 等の範囲となる。固相体内拡散係数 D_1 は、固相体の性状によって大巾に変化するが、アスファルト中で $10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$ という報告もあり、適当におもてたりも数析小い。こうして考慮のせいで D_1 を $10^8 \text{ cm}^2/\text{s}$ とし、 α を $10^4 \sim 10^6$ 等の値ととり半径 R を 30 cm とすると、 $k = \alpha R/D_1$ は $3 \times 10^8 \sim 3 \times 10^7$ という大なる値となる。こうして求まる(9)式の根 β_n は、Bessel 函数 J_0, J_1 が -1 から 1 の減衰振動函数であることを考慮すると、近似的に $J_0(\beta) = 0$ の根と見てよい。以上の D_1, R, α および $\beta_1 \sim \beta_n$ の近似値を用い、 M_t/M_0 の時間変化を求めると図-3のようになる。初期の放出量は $\lambda = 0$ の場合と比べ差はないが、長期にあつては放射崩壊による減衰の効果が大きく、最終的に放出する量は初期量の10パーセントにすぎない。

長の大なる値に対する $J_0(\beta) = 0$ の根を考慮すると(11)式は近似的に

$$\frac{M_t}{M_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{\beta_n^2 + R^2 \chi D_1} \quad (19)$$

(19)式で表わされる。

$R^2 \chi D_1$ の値によって最終的な M_t/M_0 の値が決まる。この場合、 D_1 は半減期の初めは等しい。

図-3 円柱固相体側面からの拡散放出

