

京都大学原子炉実験所

桂山 幸典

" "

正 員 の 福 井 正 美

§-1 研究の目的および方法

一般の浅層地下水中に原子炉施設等から放出される放射性イオンが混入することは予想は難しいが、深層への廃液処分や、環境中における廃棄物の保管施設や設備の不備あるいは災害等による事故から、飽和帯水砂層における放射性核種の挙動が問題となる。一般に地下水の流れは遅く、核種の挙動は遅い種か、崩壊の効果が有り、さらに事故時の場合は連続的な汚染状態ではないことなどから、対象とする範囲には広域にわたる大難把握解析より、小規模な範囲と定量的に把握することが必要であろう。従来、室内実験において吸着反応モデルの検討も行おう時、その妥当性を検証する実験の境界条件としては、一定濃度の連続流入源が用いられてきた。この場合、大難把握に必要ならば、単位砂量当りの核種の液相濃度に対する平衡吸着量が既知であれば、その核種の移動速度は液の浸入量から明らかになるが、それだけでは一定濃度の連続流入条件以外の流出応答について、いくつかの不適合の結果を生ずる。逆にいえば、一定濃度連続流入源は、境界条件として反応モデルを検討するには単調に過ぎるようである。そこで、本研究では矩形波状の流入濃度と境界条件によることをより、その破過曲線のピーク高、ピーク位置および形状についての検討を行なった。この場合、反応モデルとしては、地下水中に主として存在するCaイオンとの交換吸着による場合とSrイオンにより検証し、さらにそれだけでは説明できない、粘土鉱物の細部へ拡散して物理的に吸着をともなう場合を以下の解析により行ない、Csイオンの挙動を予測した。またCaイオン濃度については、放射性廃液が必ずしもCarrier Freeの状態ではないことや、使用清浄料に例えれば、天然UO₂約1トンと出カ2 MWで3000 MW/D/Tで燃焼した際に生じるF.P量がかなり多いこと(Srは100gr, Csは300gr程度)などから、数種のCarrier濃度で行なった。

§-2 解析および実験結果と考察

一般に微小体積の多孔性媒質中におけるトレーサー流路の質量保存則と、Langmuir型の物理吸着およびイオン交換吸着の反応速度式はつぎのように表わされる。

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} + \frac{(1-P)V}{P} \left(\frac{\partial R}{\partial t} + \frac{\partial S}{\partial t} \right) = D \frac{\partial^2 C_A}{\partial x^2} - V \frac{\partial C_A}{\partial x} \quad (1)$$

$$\frac{\partial R}{\partial t} = k_1 P C_A (R_{10} - R) - k_1' R \quad (2)$$

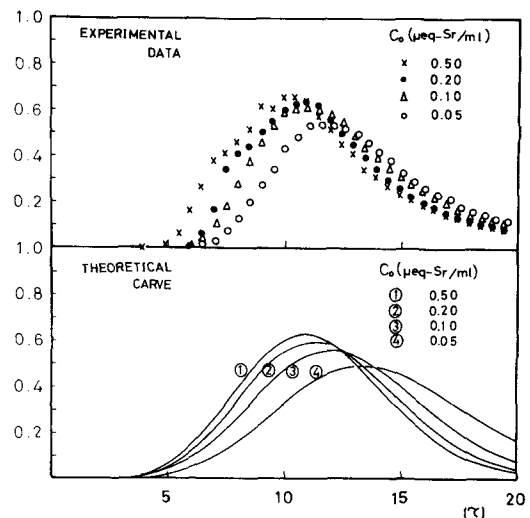
$$\frac{\partial S}{\partial t} = k_2 P C_A (n_{10} - S) - k_2' C_B P S \quad (3)$$

ここで C_A, C_B : A, Bイオンの液相濃度
 R, S : 物理吸着およびイオン交換吸着による固相濃度 R_{10}, S_{10} : 各々の平衡濃度
 P : 空隙率 n_{10} : イオン交換容量
 δ : 砂密度 k : 反応速度定数
 D : 分散係数 V : 間隙内平均流速

(2), (3)式は非線形方程式であり、(1)式と連立させ解析解は得られないが、これには疑似線形化を行ない、

(C/C₀)

図-1



Implicit法による安定な差分解を得た。実験条件としては次に示すとおりである。 $P = 0.4$ $\delta = 2.58 [gr/cm^3]$
 $V = 4.17 \times 10^{-2} [cm/sec]$ $L = 20 [cm]$ $N_0 = 2.5 [Meq/gr]$ 多孔性媒質内のメカニカル分散に関する
 定数 D/V としては、充填材に豊浦標準砂を用いたときの 0.074 とし、 ^{87}Sr イオン濃度としては Sr, Cs を
 $0.05, 0.1, 0.2, 0.5 [Meq/ml]$ の原液とし、トレーサークは $^{85}Sr, ^{137}Cs$ と放射能濃度が $10^{-2} \mu Ci/ml$ と
 なるように調整して用いた。図-1は、 Sr イオンについて、 k_1 の場合も上記の原液を矩形波状にカラム間隙水量
 の5倍だけ流入させた場合の流出応答を、イオン交換だけによる吸着の速度式の解析の結果と比較したものであ
 るが、破過曲線の形状については、若干 tailing 現象がみられる。これは、砂粒子間にイオンが物理的にトラッ
 プされ、流出するのには多少時間遅れがあるからと思われるが、全般的には、ほぼ妥当であろう。図-2は、過去
 に示した以下のような種々のモデルおよび、上記の解析を用いた、部分的に物理吸着と併発する場合の差分解
 を、 Cs イオンを $0.05 Meq/ml$ の濃度の間隙水の10倍量を流入させた時の実験結果と比較したものである。

- 1) $n = KC$ (Henry)
- 2) $n = K_1 C - K_2 C^2 + K_3$ (Houghton)
- 3) $\frac{dn}{dt} = k(KC - n)$ (Lapidus)
- 4) $\frac{dn}{dt} = k(K_1 C - K_2 C^2 + K_3 - n)$
- 5) $\frac{dn}{dt} = K_1 C_A n_B - K_2 C_B n_A, C_A + C_B = C_0, n_A + n_B = n_{\infty}$ (Hiestor)
- 6) Present Work

この結果から明らかになるように、凝似平衡を仮定して反
 応の速度論的の考えをとらない1), 2)式では、破過曲線
 の形状は、 k_1 と変える Factor が分散項の k_2 となる
 ため、尖鋭になる。また3)~5)式では、図、液相の濃度分
 布率に吸着過程で若干の遅れがあるが、移動速度の
 らみ平衡を保つように挙動するから、矩形波状に流入さ
 れたものの反応速度の程度により平坦化されて流出する
 形となり、いわゆる tailing 現象の説明がでない。
 Cs の場合は Sr よりもこの現象が著しく、単に充填粒子間
 にイオンがトラップされる時間遅れだけとは考え難く、
 その現象の原因は、一部充填粒子の内部に吸着される
 るが、外の間隙へ拡散脱着してきるとの考えられ、そ
 れは実験的に示される。従って、6)の場合には(2)式に
 $k_1/k_2 = 0.002$ として計算した。

その図、液相の濃度分布を図-3に示す。図-4は
 上記の4種類の Cs 原液を、カラム間隙水量の10倍流入さ
 せた場合の破過曲線であるが、低濃度の場合ほど外部吸
 着量に比べて内部吸着量の比率が高くなるから、tailing
 の効果も大きい。高濃度ではその影響はみられ、 Cs の
 挙動がほぼ定量的に予測できる。

参考文献 1) 原厚協 核分裂生成物の放出と移行, S. 42年

2) 福井 放射性イオンが帯水砂層における吸着について,
 第26回年次学術講演会講演集, S. 46年

3) 桂山, 福井 多孔性媒質中の流れ軸方向の分散現象
 について拡散式の適用について,
 第27回年次学術講演会講演集, S. 47年

図-2

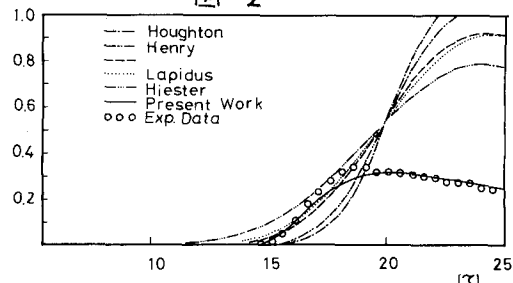


図-3

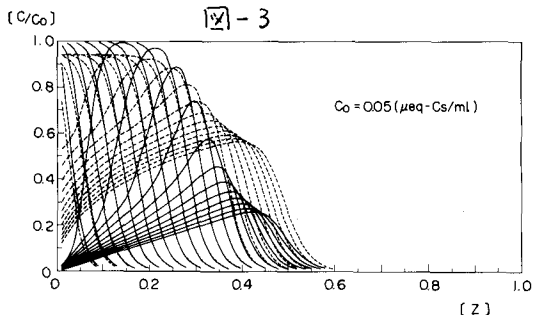


図-4

