

II-271 底質土層における長寿命放射性核種の拡散について

京都大学原子炉実験所

桂山 幸典

正員

福井 正美

§-1 研究の目的および方法

環境水中に放出された長寿命放射性核種の挙動を予測することは衛生工学と保健物理分野の課題であるが、特に湖沼や海底の底質土層中におけるその挙動は機械的な攪拌を除いて広義の拡散によるものである。そして物理化学的な吸着作用により、分子拡散だけでなく移動よりもさらに拡散現象が遅くなる。したがって、室内実験において短期間にその分子拡散係数よりも小さい拡散係数を求め、底質土層中における汚染の推定を行なうことは非常に困難である。今回、拡散境界面を非定常とした条件を実験条件に適用することにより、解析は定常拡散条件よりも複雑であるが、容易に実験条件で室内実験を行ない、拡散係数を求めたのである。ここに報告する。イオンおよび分子の多孔性媒質中における移動が遅く、固-液両相間における平衡が擬似的に成立している場合はヘンリー型の吸着モデルが通常用いられる。この反応に使い、かつ崩壊定数 λ を有する核種の媒質中における物質移動の基礎式は(1)式で示される。ここに $Q = KC$ 、および $C = w \cdot e^{-\lambda t}$ なる変換函数 w を用いると、よく知られている(2)式を得る。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{(1-P) \lambda Q}{P} \frac{\partial Q}{\partial t} = \frac{D_e}{P} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \lambda C - \frac{(1-P) \lambda Q}{P} \quad (1)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = \alpha \cdot \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} \quad (2)$$

$$\alpha = D_e / \{P + (1-P) \lambda K\} \quad (3)$$

拡散媒体は通常半無限長と考え、上述のように拡散物質の移動速度が小さいことから十分である。そこで(2)式の解は境界条件として一定濃度を想定すれば簡単なものとなるが、長期間にこの条件を満たすには多量のR・I溶液を必要とし、室内実験では困難な条件となる。そこで、初期、境界条件を $z=0$ のように考え、上層液の変化量が境界面を通して媒体中に移行した量に等しいとすると(4)式の解を得る。

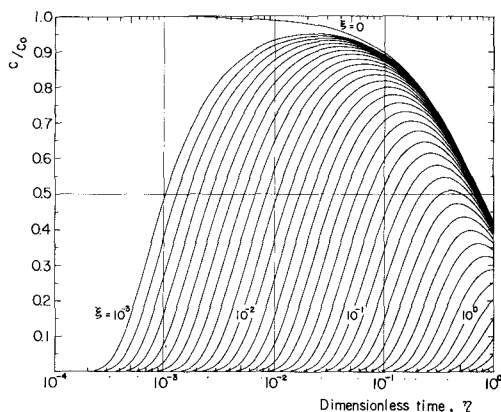
$$\begin{aligned} \text{I.C: } w(z, 0) &= 0 & \text{B.C: } w(\infty, t) &= 0, \quad w(0, t) = v(t) & H\{C_0 - v(t)\} &= -\int_0^t D_e \frac{\partial w}{\partial z} \bigg|_{z=0} dt \\ C/C_0 &= \exp(D_e z / \alpha H + D_e^2 t / \alpha H^2 - \lambda t) \cdot \text{erfc}\{z / 2\sqrt{\alpha t} + D_e H / \alpha H\} \end{aligned} \quad (4)$$

ここで汚染進行速度の指定上、安全側を考えると $\lambda = 0$ とし、変換パラメーター ξ , η を用いると(7)式を得る。

$$\xi = D_e z / \alpha H \quad (5), \quad \eta = \sqrt{\alpha t} \cdot D_e / H \quad (6), \quad C/C_0 = \exp(\xi + \eta^2) \cdot \text{erfc}(\xi / 2\eta + \eta) \quad (7)$$

図-1に ξ をパラメーターとした計算結果を示す。さて、拡散係数を求めるには(3)および(6)式が必要である。種々の無機イオンの無限希釈液相での拡散係数は普通 $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ($10^{-1} \sim 10^{-3}$) であり、これは多孔性媒質の幾何学的な条件のみが加わって求めらる D_e は、単一の媒体については液相中の拡散係数の変動幅以上に变化するとは考え難く、むしろ種々のイオンの特殊性は媒体との吸着の分配比に顕著に現われる。したがって、 α を求める前に媒体との反応性がほぼ無視される ^{90}Sr トレーサとして D_e を求め、これを代表値とした。実験装置としては液の混合と完全に行わさせるため、底質土のうえにガラス板に拡散カラムとは別に貯留槽を設け、底質土上面を薄層にして液循環させ、非定常拡散とした。実験材料としては D_e の充填材粒径による影響を調べるために、0.1, 0.6, 1.0, 3.0, 5.0 mmの平均粒径を

図-1



有する Glass beads を、この反応性も有する媒質としては主に豊浦石英砂を用いる。拡散物質としては、核分裂生成物として Cs, Ru, Sr, Zr, Ce を、誘導放射性核種としては Zr, Mn, Co, Cd, Hg を塩化物形態を用いる。

§-2 結果および考察

はじめに Glass beads を多孔性媒質とし、トリチウム水とトレーサーとを混合し、(7)式において $K=0$, $\alpha_1=0$ とし理論曲線を用いて、上層液の濃度変化に相当する α_2 を求め、(6)式から求められる De を図-2に示す。これはよれば Glass beads の粒径が大きくなるにつれて De も大きくなり、粒径 1 mm のものは $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ となる。小さな粒径のものほど、 De が小さくなるのは $^3\text{H}_2\text{O}$ の拡散過程において、粒と壁の影響が現われることが考えられる。よって 3 mm と 5 mm の粒径の場合は De 値が大きくなり分散しきり、これは媒質の表面において流れる孔の中を流れるものと考えられる。豊浦石英砂については $^3\text{H}_2\text{O}$ と ^{36}Cl とをトレーサーとして De を求め、前者の場合が $1.5 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、後者の場合が NaCl を $10 \text{ } \mu\text{g}/\text{ml}$ の濃度で Carrier として添加した場合に、 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ である。これは分子拡散の律速する過程では $^3\text{H}_2\text{O}$ が砂粒の細孔における結晶水と交換作用が附加され、単なる間隙を移動する Cl イオンより媒体中での移動が小さくなるものと考えられる。従って、媒体との反応が生じない時の De の代表値としては豊浦石英砂の場合 $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ を用いる。さて、表-1 には一連の実験が終了段階での固-液両相濃度から直接求めた K と、これを用いて(3)式から求めた α_1 および上層液の濃度変化から(6)式を用いて求めた α_2 を示す。これらの比 α_1/α_2 とみれば、 α_1 の α_2 のオーダーが $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であることは考えれば得られる α_1 の値はほぼ妥当なものと思われる。

図-3 では拡散期間が1週間後の着着分布を示すが、当然のことながら α_1 の拡散係数が小さいものは拡散距離が短く、 K が小さく α_1 の拡散係数が大きいイオンほどその距離は長い。イオン濃度の影響や比の底質土に対する例は表表の際に示す。

記号 Q, C : 固相 (unit/gr) および液相濃度 (unit/cm^3)

p : 間隙率 ρ : 密度 (g/cm^3) K : 分配係数 (cm^3/gr)

De, α : 有効拡散係数および α_1 の拡散係数 (cm^2/sec)

$v(x)$: 上層液濃度 C_0 : 上層液濃度 H : 上層液深 (cm)

表-1

	Cs	Ce	Zn	Hg	Co	Zr	Ru	Cd	Mn	Sr	
分配係数 K	11.4	6.9	1.8	1.5	1.4	1.4	1.2	7.0	3.5	1.6	cm^3/gr
$\alpha_1 = De / (1-p)\rho + K$	0.54	0.88	3.3	3.9	4.3	4.3	5.1	7.9	16	32	$10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$
$\alpha_2 = De \pm / \rho^2 H^2$	0.60	0.50	3.7	0.65	3.0	1.9	2.0	4.2	14	27	$10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$
α_1/α_2	0.90	1.8	0.89	6.0	1.4	2.3	2.6	1.9	1.1	1.2	—

図-2

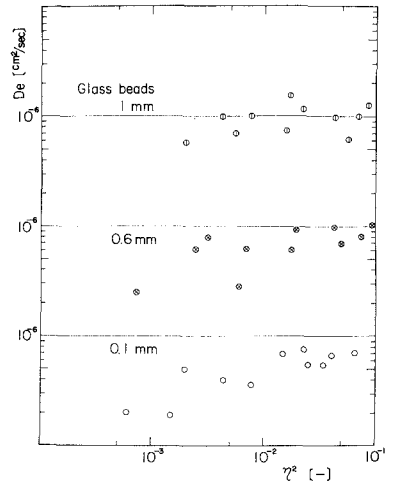


図-3

