

放射性廃棄物の海洋投棄処分に関する研究
— 固化投棄体中放射性成分の溶出について —

京大工. 正員. 岩井重久, 井上頼輝, 奇島泰. 学生員. 〇青山勲.

序言 放射性物質を含む固化体を、深瀬などの処分場に投棄した場合、固化体が容器に密封されたものであり、ても、海水の化学的侵食や氷圧の作用、それ投棄時の海底への撃突などにより、破壊が生ずる危険性は避けられない。こうした事態に於いて固化体表面が海水に接触すると、海水中化学成分との反応や解離の結果、放射性成分は海水中に溶出するが、この機構を明らかにし、定性的定量的な資料を得ることは、安全度の高い固化体の開発、ひいては海洋投棄処分の安全性確保のためにも重要な問題である。溶出の速度や量は、固化体の物理化学的性状や環境条件に依り異なるが、今回は、特に被圧条件を考慮することなく、海水中における再処理廃液セメント固化体を対象として、セメント成分による核種の核種吸着性、固化体からの溶出について検討を行なう。

実験方法 (1) セメントによる放射性核種の吸着除去：セメントによる ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{144}Ce , ^{226}Ra , 核分裂生成成分(F.P.)の除去率と、セメント添加量 $8\text{g}/100\text{ml}$, $2\text{g}/100\text{ml}$, $0.5\text{g}/100\text{ml}$, 核種濃度(無担体) $6 \times 10^3 \sim 5 \times 10^4 \text{ } \mu\text{Ci}/\text{ml}$, セメント添加前の液PH 3.0 (HCl酸性)の条件下で示した。

(2) 再処理廃液セメント固化体からの ^{137}Cs , ^{90}Sr の溶出：[模擬廃液] Purex 法再処理による模擬廃液と、 NaOH , $\text{Ca}(\text{OH})_2$ で中和したものをを用いた。廃液中の核種の濃度については、2500 MWd/年照射、90日冷却後の燃料1トンの再処理に於いて、100 カリベの廃液が生成するものと、この廃液中の核種の濃度(^{137}Cs , $1.48 \times 10^3 \text{ g/mol}$, ^{90}Sr , $1.80 \times 10^3 \text{ g/mol}$)に同一となす。各中和廃液にそれぞれ CsNO_3 , $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ を担体として加えた。[固化方法] 各中和廃液を1, 3 倍に希釈したものに、廃液セメント比を変えて固化した。供試体は直径3.5 cm, 高さ4.5 cm の円柱形で、総数32個。[溶出試験] 溶出が生ずる固化体の表面積を一定とするため、上・下面および側面の上下端部にはアクリル樹脂塗料を塗布し、側面積を 44 cm^2 とした。放射性成分の溶出は浸漬条件に依り異なるが、本実験では、固化体を一定体積(250 ml), 室温の海水、水道水に浸漬し、溶出する成分は浸漬液の自然対流により混合せしめて、平衡濃度に達するまで溶出量の測定を行なう。[溶出実験の解析] 廃液中の放射性核種や各種の塩類は、固化体中においてはセメント成分と氷和に依り、生ずる結晶と結ぶ。あるいはそれを含む氷を形成し、それ単独結晶で存在するものと認められる。こゝろ浸漬液中に接触すると、浸漬液中化学成分との反応や解離を生じ、溶解性の物質は液相に移行する。こうした物質移動の速度は、化学反応や解離に依り異なり、浸漬液相における分子拡散に依り律速されると考えらる。かゝる物質移動量は界面と液側の濃度差を推進力として(1)式のようにならる。表は物質移動係数(溶出係数と呼ぶ)である。

$$N = k(C_\infty - C) \quad (1) \quad \frac{dC}{dt} = \frac{AS}{V}(C_\infty - C) \quad (2) \quad C = C_\infty \left[1 - \exp\left(-\frac{AS}{V}t\right) \right] \quad (3)$$

いる。溶出にかかる表面積を S , 浸漬液の体積を V とし、液中は自然対流により混合せしめるとすれば、浸漬液中の溶出成分の濃度変化の基礎式は(2)式で表わされ、初期に濃

度率の条件から、濃度変化は(3)式で与えられる。溶出係数は、濃度が平衡値の1/2に達するに要する時間を $T_{1/2}$ とすれば $k = 0.693 / T_{1/2} \cdot T_{1/2}$ として求めることもできる。

実験結果 (1)セメントに与る放射性核種の吸着除去：表-1に示す結果に示せば、 ^{137}Cs は

全くセメントに対する吸着性がない。アルカリ金属であるセシウムは化学的性質はカリと類似しており、高いPHのもてでと安定である。 ^{90}Sr は18~27%の除去率であり、一部はセメント水和物とのイオン交換や共沈により除去されている。 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{134}Cs などは、アルカリ側では不溶性の水酸化物を生じやすく、セメント水和物と物理化学的に結びついて除去され、84~99%の高除去率が得られている。F.Pは種々の核種を含む割合に、90%程度の高除去率が得られている。これらの結果、生物学的に危険度の高い ^{137}Cs 、 ^{90}Sr などは、固化体中にお

表-1 セメントに与るR.Iの除去率

		除去率(%)		
セメント濃度(%)	PH	8x10 ⁻⁴	2x10 ⁻³	5x10 ⁻³
		12.4	12.1	11.5
核種	^{137}Cs	0	0	0
	^{90}Sr	26.7	17.6	17.3
	^{60}Co	98.1	99.1	96.5
	^{134}Cs	99.1	92.5	99.3
	^{65}Zn	97.2	96.0	84.0
F.P		93.1	91.2	87.1

いてほとんどが単独結晶の形で存在するものと推定され、その溶出に関しては特に考慮を要する必要がある。(2)再処理廃液セメント固化体からの ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の溶出：浸透液中放射性成分濃度の変化は、32の実験のうち半数余は(3)式で示されるようなものとなり、2~3週間で平衡に達した。一部には、直線的に、あるいはS字型に増加したのち平衡に達するものも生じたが、特に縮水で浸透液に与るものに多く、縮水の侵食による固化体表面の剝離などが原因と思われる。しかし、固化体が多孔体である以上、多孔体内拡散が得達段階であるような溶出機構については、なにも予備計算の余地がある。溶出量については、当然のことながら、廃液希釈度が低く、廃液セメント比の大きなもの、つまり固化体に含まれる原廃液量の多いものほど浸透液中平衡濃度が高い、すなわち溶出量は大きい。しかし、平衡時には、溶出核種量の固化体中初期核種量に対する割合(溶出率と呼ぶ)は各核種について一定ではなく、固化体中原廃液量の減少とともに低下する。この原因は、固化体の空隙度や浸透状態が異なり向らうるためにあると思われる。廃液の中和剤の種類によっても溶出率は異なり、一般的には、 Ca(OH)_2 中和に与るよりも、 NaOH 中和に与る場合に、より小さい。浸透液の種類によ、て生ずる溶出率の差は、比較的小さく、特に特に縮水成分の存在が溶出率を増大せしめるという事実はない。縮水中には安定なセシウム、ストロンチウムの他に多くのイオンが含まれるから、化学平衡的には、縮水を用いた場合に溶出率はより小さくなる。次に溶出核種についてみると、浸透液が縮水の場合、中和剤が Ca(OH)_2 であれば ^{90}Sr 、 ^{137}Cs ともに同様な溶出率が得られ、中和剤が NaOH であれば ^{137}Cs の溶出率が大きい。溶出係数 k については、浸透液が縮水であると k は0.72~0.46(cm^2/d)となり、 NaOH 中和に与る場合に幾分大きくなる。希釈度、廃液セメント比、核種に与る差は有意でない。浸透液が水道水の場合、中和剤は Ca(OH)_2 とすると、 ^{137}Cs については1.25~0.55(cm^2/d)、 ^{90}Sr については0.71~0.45(cm^2/d)の値が得られ、この範囲において、固化体中原廃液量の減少とともに下がる。中和剤が NaOH の場合には、0.92~0.80と変動は小さい。 k の値にこうした傾向が生ずる原因については、なにも詳細な検討が必要である。

以上、主として定性的な結果について述べたが、詳細は講演時に発表の予定である。