

放射性廃棄物の海洋処分—セメント固化体内核種の溶出について—

京大工 正員 岩井重久 井上頼輝
 “ 学生員 青山 勲、吉川 進

序言

放射性廃棄物の海洋処分に際して、その安全性を評価する観点から一連の研究を進めてきた。これ迄、セメント固化体の物理的特性⁽¹⁾、セメント固化体中における核種の存在形態⁽²⁾、無機イオン交換剤添加による固定性の改良効果⁽³⁾、核種の溶出機構について理論的考察を行い、実験的検討を加えてきた。今回は¹³⁷Cs、⁹⁰Sr両核種の溶出機構を表わす拡散理論の妥当性を更に検討し、実際に固化体を海底に投棄した場合を想定し、高圧、低温下での核種の溶出機構の検討を行い、又アメリカ、フランス等における標準試験法との関連性について報告する。

実験方法

(1) 浸漬液温度、水セメント比変化に基づく溶出特性の実験

本研究では廃液の代りに 10^{-3} M/lのCs(NO₃)およびSr(NO₃)₂水溶液とそれぞれ¹³⁷Cs、⁹⁰Srをトレーサーとして加えたものを用いた。この水溶液を練り混ぜ水として水セメント比(以下W/C)を40, 50, 60%にとり、直径35mm、高さ50mmの固化体試料を作製した。これを1週間、温度100%で室温養生した後、ポリセン内で500mlの水道水、海水、人工海水に浸漬させ、定期的に浸漬液の交換を行い、同時にその放射能濃度を測定して浸漬期間中の放射性核種の溶出量を求めた。各々のポリセンをそれぞれ20°C、15°C、25°Cの恒温器内に入れ、浸漬液温度を一定になるようにした。

(2) 高圧下の溶出特性の実験

試料は実験(1)と同様である。図-1に示す圧力装置内に試料を入れ加圧後、一定期間毎に採水し、溶出量を求めた。この実験では、人工海水を浸漬液に用いた。

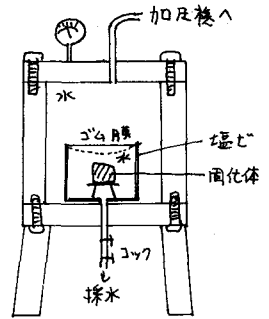


図-1

理論解析

(1) 拡散溶出

円柱上固化体から拡散によって核種が溶出する場合、拡散式は、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(D r \frac{\partial C}{\partial r} \right) - \lambda C \quad \text{----- (1)}$$

拡散係数は一定であるとして、次の初期境界条件のもとで解くと

$$\text{①式を得る。} \quad C(r, 0) = C_0 \quad 0 \leq r \leq R \quad \text{----- (2)} \quad \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0 \quad \text{----- (3)}$$

$$D \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R} = -\alpha C(R, t) = 0 \quad \text{----- (4)}$$

$$C(r, t) = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{2 C_0 J_0 \left(\frac{r}{R} \beta_m \right)}{\beta_m J_1(\beta_m)} e^{-\frac{D}{R^2} \beta_m^2 t} \quad \text{----- (5)}$$

$$\text{溶出率は、} \quad \frac{M_t}{M_0} = \sum_{m=1}^{\infty} \frac{4D}{(D \beta_m^2 + R^2 \lambda)} \left\{ 1 - e^{-\left(\frac{D}{R^2} \beta_m^2 + \lambda \right) t} \right\} \quad \text{----- (6)}$$

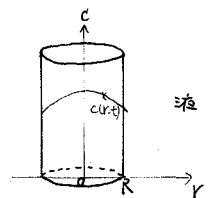


図-2

ここで、 C : 放射能濃度 (cpm/ml) D : 拡散係数 (cm²/sec) λ : 崩壊定数 (/sec)
 t : 時間 (sec) $\beta_m: \beta J_1(\beta) - k J_0(\beta) = 0$ の根. $k = \sqrt{R_0}$
 J_0, J_1 : オール種、0次、1次の Bessel 函数.

2 (c) 温度変化と拡散係数

セメント固化体は約 35~40% の空隙率を有し、イオン性の放射性核種は、この細孔内を浸入してきた浸漬液を媒体として拡散する。この液相拡散については、

(i) 流体力学的な簡単なモデルに基づくもの、

(ii) 移動プロセスあるいは遷移的な活性中間状態を考えたいわゆる Eyring の理に基づくもの、

(iii) (i)(ii) に基づく実験式、等の考え方がある。

拡散係数と温度との関係を記述する理論的、実験的な式が数多く提案されているが、いずれも温度上昇につれて拡散係数は増加し、浸出率の増加が予測される。Stokes-Einstein は (7) 式に示すように拡散係数は絶対温度に比例し、拡散媒体の粘度に反比例するとしている。

$$D_{AB} = \frac{kT}{6\pi\eta a} \quad \dots\dots\dots (7)$$

実験結果

実験結果の一部を図 1~図 6 に示す。一般にアルカリ金属である ¹³⁷Cs は広い pH 領域でイオン状態で存在する。セメント固化体内でもイオン状態で存在するため、浸漬液の侵入によって容易に拡散浸出する。⁹⁰Sr はセメント水和物結晶生成の段階で Ca と同形置換され、固化体内に固定されるため、溶出比は ¹³⁷Cs に比して約 1/10 になっている。しかし固定されない部分は溶出曲線の勾配が ¹³⁷Cs とほぼ同じであることから、¹³⁷Cs と同様に固化体内でイオン状態で存在し、拡散によって溶出すると考えられる。w/c が高い程溶出比が大きくなっているが、これは w/c と空隙率は高い相関性があり、空隙率が大きくなると有効拡散数も増加するためである。拡散係数と温度との関係は、浸漬後、初期の頃には 15°C より 20°C の場合の方が高い溶出比のデータを得たが、30 日以後になるとほぼ Stokes-Einstein の式に従う。

圧力の溶出比に及ぼす影響について見ると、拡散は分子の自由エネルギーが問題となるが、分子運動論によると、圧力項は他項に比して無視し得る程小さいとされており、実験結果も、常圧と 200 気圧下の溶出はほとんど同じであった。

- 参考文献、(1) 保健物理 1968 Vol. 1, NO. 1.
 (2) オ 22 回年次学術講演会概要
 (3) オ 23 回

