

京都大学工学部 工博 岩井重久 京都大学原子炉実験所 工博 筒井天尊

大阪府立放射線中央研究所 ○松村 隆

I はしがき

粘土がかなり高いイオン交換能を有し、安価に多量得られ、かつ耐放射線損傷性が大きいので、従来から低レベル放射性廃水の凝集沈殿処理やイオン交換処理に用いられている。粘土を高分子凝集剤とともに放射性廃水の凝集沈殿処理に使用すると、他の無機系の凝集沈殿剤に比べて反応生成物による塩類濃度の増加をきたさないことや、他の凝集沈殿剤では除去しがたい ^{137}Cs を選択的に吸着除去することなどの利点がある。

本報告では、2:1型粘土鉱物のうち、膨脹型のベントナイトと非膨脹型のセリサイトを用いて、ジャーテストにより ^{137}Cs の吸着特性を調べた結果について述べる。

II 実験方法と結果

群馬県産のベントナイトおよび新潟県産のセリサイトを用い、これらを粉碎したのち沈降法で2ミクロン以下の粘土部分を集めた。この粘土部分にK, Na およびCaの塩化物を加え、Jacksonの方法で各種塩類飽和粘土を調製した。

1 セシウムの吸着能

$10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ 程度の ^{137}Cs を含む 10^{-5}N CsCl 水溶液 20mlにKClを加え、Kイオンの濃度が 10^{-2}N になるように調製した。この水溶液にK型粘土を100mgを加え、ときどき振とうしながら24時間後遠心分離し、分離液の比放射能からKイオンの共存下でのK型粘土のCs吸着能を調べた。同様な操作をNa型およびCa型粘土についても行なった。その結果は第1表の通りである。

Cs吸着能はどの粘土を用いても、Na型がもっとも大きく、ついでCa型が大きく、K型がもっとも小さい値を示した。

2 ジャーテスト

Na型のベントナイトおよびセリサイトを凝集沈殿剤として選び、ジャーテストにより ^{137}Cs の除去率を調べた。すなわち、キャリアフリーの ^{137}Cs を含む水溶液 100 mlにNa型のベントナイトまたはセリサイトを加え、1～2分間急速かく拌を行なったのち、ポリアミド系高分子凝集剤（コナンフロック100）の水溶液を加え、更に2分間急速かく拌後20分間緩速かく拌を行なった。その後20時間静置沈降させたのち、上澄液の比放射能から常法により除去率を求めた。添加した粘土の濃度の除去率に及ぼす影響を第1図に、pHの除去率に及ぼす影響を第2図に、Cs, K, NaおよびCaイオンの共存する場合の除去率を第3図に示した。得られた主な知見は次の通りである。

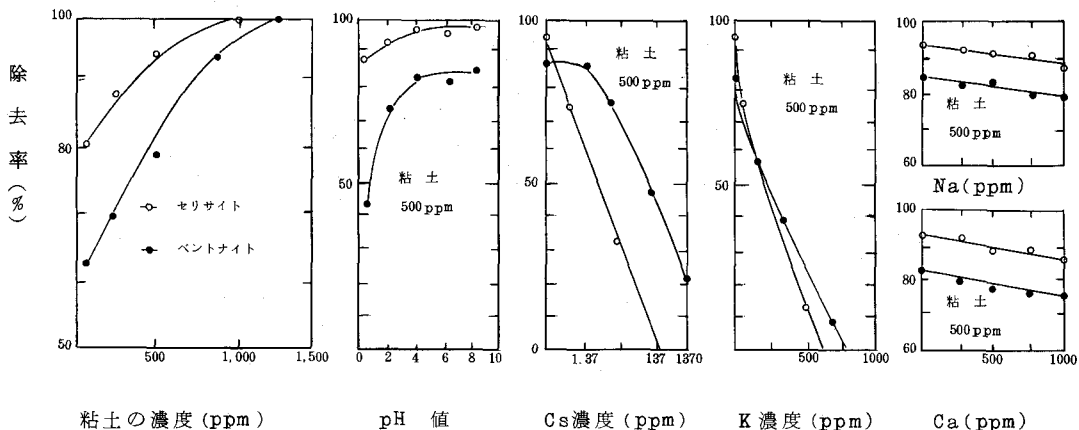
(1) Csの希薄溶液からのCsの除去率はC軸の間隔が $10\text{\AA}$ である非膨脹型のセリサイトの方が膨脹型のベントナイトより高い値を示し、500 ppmの添加で95%程度除去できる。

第1表 Cs 吸着能

飽和 カチオン	Cs 吸着能 ($\mu\text{g/g}$ 粘土)	
	ベントナイト	セリサイト
K	132	132
Na	246	242
Ca	200	198

(2) Csの除去率はpH3～10で一定の値を示し、pH2以下では急速に減少する。

(3) CsおよびKイオンが共存する場合、除去率は急速に減少する。しかし、NaまたはCaイオンが1000PPm 程度共存しても除去率にほとんど影響を与えない。



第1図 粘土濃度と除去率 第2図 pHと除去率 第3図 共存塩濃度と除去率の関係

3 セシウムの固定能

ベントナイトに吸着した ^{137}Cs は他のカチオンで溶出されるが、セリサイトに吸着した ^{137}Cs は容易に溶出されない。セリサイトの ^{137}Cs 固定能を調べるため、 ^{137}Cs 型セリサイトを調製し、これにIN各種溶離液を50倍量加えてときどき振とうしながら24および48時間後に遠心分離し、分離液の比放射能から溶離度を測定した。その結果は第2表の通りである。

セリサイトに吸着した ^{137}Cs 第2表 ^{137}Cs 型セリサイトの ^{137}Cs 溶離度

は層間に存在しているKを置換して侵入し、強く固定される。しかし、これは結晶格子の端の部分でのみ起る現象なので固定容量は少ない。エチ

接 触 時 間	I N 溶 離 液 による 溶 離 度 (%)								
	CaCl_2	HCl	NaCl	HNO_3	KCl	サクサン ソーダ	サクサン アンモン	エチル アミン	メチル アミン
24	0.8	1.6	2.7	2.6	5.0	5.0	7.4	12	14
48	1.2	2.8	5.1	5.2	6.9	8.0	8.1	15	20

ルアミンやメチルアミンで溶離される ^{137}Cs は層間以外の部位に吸着しているものと考える。

■ むすび

水酸化鉄や磷酸鉄凝集では廃水中の ^{137}Cs を除去することは困難である。そこで、現在ベルギーのモル、フランスのサクレ、英国のハウエル原子力研究案では ^{137}Cs 除去を目的としてフェロシアン化法が用いられている。ところが、この方法では反応生成物としてKイオンが生ずるので、引き続いて行なわれる砂ろ過や無機イオン交換塔の機能を著しく阻害する。一方、2：1型の粘土鉱物であるベントナイトやセリサイトはKまたは NH_4 イオンのほとんど共存しない低Cs濃度の溶液から、 ^{137}Cs を選択的に吸着するので凝集沈殿剤として有効である。とくにセリサイトは ^{137}Cs を強く固定するので凝集沈殿剤としてのみならず、固定化材料としても有効であると考えられる。