

京大工 正員 井上 駿輝 ○学生員 森澤 真輔

原子力発電の實用に、核燃料再処理が行われる様になると、強放射能で硝酸濃度の高い再処理廃液が大量に蓄積される。現在この再処理廃液は地下タンクに半永久的に貯留することと考へられてゐるが、これを事故などで地中に漏洩すると保健物理上重大な影響が周辺に現れると考へられる。そこで本研究では再処理廃液が地中に入った場合の挙動を、特に保健物理上重要なストロンチウムに注目して実験的に調べる。同時にこの様な放射能持種の地下移動に関する従来の研究が現象とイオン交換体内における成分間イオン交換と考へてゐるのに対し、ここでは多成分間のイオン交換であるとして Frontal analysis⁽¹⁾ の手法に依つて解析した。

Sillén の示した Frontal analysis は、イオン交換剤中を通過する溶液およびイオン交換剤中の放射能持種の濃度変化曲線(溶出曲線)を解析的に求める手法である。この手法は、イオン交換剤と溶液との間に交換平衡が成立してゐるかつ持種の拡散が無視できる場合に成立する。Sillén は問題とする系を無限に長い管の中に性質の全く同じイオン交換剤が一樣に充填されてゐる模型を表し、この系を記述するのになつた変数を用いた。一つはイオン交換層と通過する溶液の量を表す V で、他の一つはイオン交換剤の量を表す X である。この二変数を用いて管内の物質収支式を表すと、

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial X}\right)_V + \left(\frac{\partial q_i}{\partial V}\right)_X = 0 \quad (1)$$

となる。ここに C_i , q_i は各々第 i 番目の物質の溶液およびイオン交換剤内の濃度を表す。特にイオン交換剤が最初($V=0$)均質であるから入して来る溶液の組成が管の入口($X=0$)で常に一定の場合には、 C_i , q_i は $C_0V/q_0X = \varphi$ なる変数のみの関数となる。このとき(1)式は変形されて、

$$\frac{dC_i}{d\varphi} \left(\frac{C_0}{q_0} \frac{dq_i}{dC_i} - \varphi \right) = 0 \quad (2)$$

この場合

$$C_i = \text{const.} \quad \text{または} \quad \varphi = (C_0/q_0) \cdot (dq_i/dC_i) \quad (3)$$

(3)の第一式は X または V のある値において C_i が不連続に変化することを示してゐる。この位置を表す φ の値は(4)式で定まる。また(3)の第二式は(5)式で与えられる二つの φ の値の間で成立する。

$$\varphi_s = \Delta q_i / \Delta C_i \quad (4)$$

$$\varphi_1 = \frac{C_0}{q_0} \left(\frac{dq_i}{dC_i} \right)_{C_i=0} \quad \varphi_2 = \frac{C_0}{q_0} \left(\frac{dq_i}{dC_i} \right)_{C_i=C_0} \quad (5)$$

(4)式の φ_s , (5)式の φ_1, φ_2 は各々交換平衡曲線の原點および $C_i=C_0, q_i=q_0$ 点における接線の勾配を示す。

放射性ストロンチウムの世中での挙動を調べるために次の実験を行った。まず予備実験として、内径 2.5 [cm] のカラムに Ca 型の強酸性陽イオン交換樹脂 (Amberlite IR120B) を 55.0 [g] を充填し、 ^{89}Sr を混入した 0.850N- HNO_3 溶液を硬水として連続的に通水した。通水速度は 0.36 [cm/min], Amberlite の交換容量は 340 [mg/g], 交換平衡定数は $K_H = 3.45$ である。カラム流出液中の Ca^{2+} イオン, H^+ イオン

および ^{89}Sr の濃度を測定し通水量に対してプロットしたものを図-1に示す。図は、まず模擬廃液中の硝酸イオン交換層を通過し、その後で ^{89}Sr が遅れて移動することを示している。

ヌに内径10[cm]、高さ100[cm]のカラムに砂を9300[gr]を充填し、 ^{89}Sr と混入した0.085N- HNO_3 溶液を連続的に通水した。試料砂としては京都大学工学部構内のものと使用した。この砂は密度250[gr]

有効径0.32[mm]、交換容量は13.5[meq/gr]、交換平衡定数は $K_d=53 \times 10^{-2}$ である。また充填した砂層の空隙率は40%、模擬廃水の通水速度は149[cm/min]である。カラム内流出中の Ca^{2+} イオン、 H^{+} イオン、および ^{89}Sr の濃度を測定して得た溶出曲線と、frontal analysisによる理論曲線とを図-2に示す。同図は硝酸による多量の Ca^{2+} イオンが溶出されることを示すと同時に、まず模擬廃液中の ^{89}Sr が地中へ移動し、その後で硝酸が移動することと示している。これは予備実験の結果とほぼ一致の現象であり、 H^{+} イオンは一個イオンより強くイオン交換されるという一般常識とも反する現象である。しかし実験した交換平衡曲線(図-3)が示す様に、試料砂によ、ては一面の H^{+} イオンが二面の Sr^{2+} イオンより強くイオン交換されるという現象が起り得ることと解る。

以上の実験から得られる結論および問題点と列挙すると次の様になる。

- (1) Frontal analysisによる理論溶出曲線は不連続な曲線となる場合があるが、平均溶出量の位置は実験値とよく一致しており、全体的にみて実験値の傾向をよく表す。
- (2) 本実験では、砂と廃液との間のイオン交換については考へながら、この点に関する基礎的研究が必要である。また廃液中の高濃度の硝酸と砂との相互作用についても調べる必要がある。
- (3) Frontal analysis の手法には改良すべき点が多く残されている。たとえば拡散項、自然減衰項とも考慮して精度を高める必要がある。

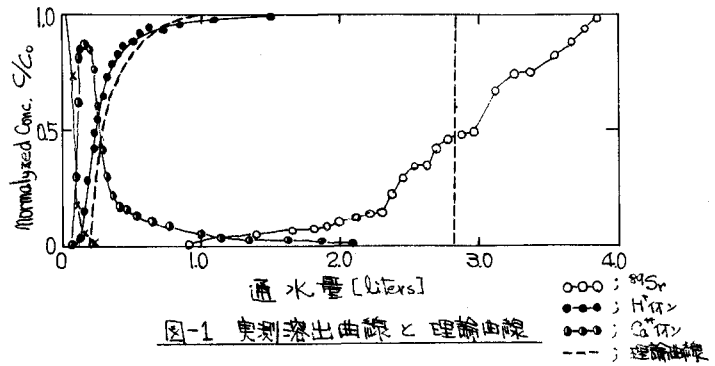


図-1 実験溶出曲線と理論曲線

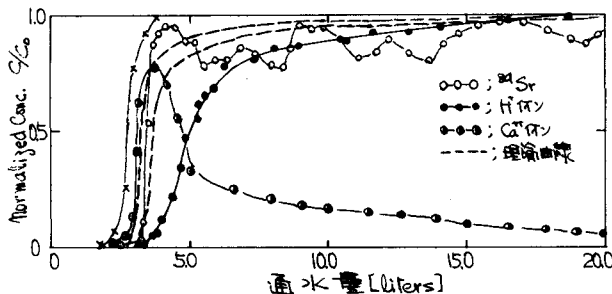


図-2 実験溶出曲線と理論曲線

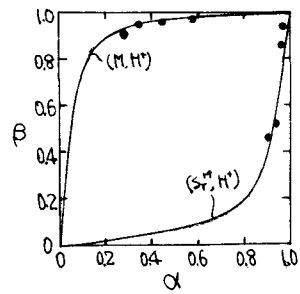


図-3 実験交換平衡曲線