

京都大学原子炉実験所

正員 筒井 天寿

“ “

正員 ○西牧 研社

放射性陽イオンが地下帯水層を移動する時の移動速度を研究するためには、放射性陽イオンが帯水層を構成する土砂（交換吸着体）へどのように吸着するかを調べる必要がある。地下水中には種々の陽イオンが含まれているが、主として Na^+ , Ca^{2+} および Mg^{2+} であり、帯水層を構成する土砂はこれらのイオンと交換平衡に達しており、土砂の有する交換吸着の座はこれらのイオンで飽和されていると推測できる。一方、地下水中のこれらの陽イオンの量に比べて、地下水中へ混入する放射性陽イオンの量はきわめて微量であるので、放射性陽イオンの土砂への交換吸着はこれら Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} の量によって支配されると考えられる。ところで、1価の Na^+ よりも2価の Ca^{2+} , Mg^{2+} の方が交換傾度が高く、同じ2価では Mg^{2+} よりも Ca^{2+} の方が交換傾度が高い。そこで、本報では他のイオンをすべて Ca^{2+} に置き換えて、交換吸着体の交換吸着の座はすべて Ca^{2+} で飽和しており、地下水中には陽イオンとして Ca^{2+} のみが存在し、他のイオンは実存しない作へ、微量の放射性陽イオンが加わり、交換吸着体に交換吸着されるというように単純化して取り扱うことにした。

回数	アンバーライト IR-120B		グリーンサンド		KUR砂	
	洗淨液量 ml	Ca^{2+} 濃度 ppm	洗淨液量 ml	Ca^{2+} 濃度 ppm	洗淨液量 ml	Ca^{2+} 濃度 ppm
1回目	129.3	36.5	131.3	16.4	133.4	1.5
	169.2	26.9	166.3	11.5	164.2	1.1
2回目	130.4	1.8	130.5	<1	135.5	<1
	172.2	1.2	168.1	<1	180.2	<1
3回目	128.5	<1	129.9	<1	133.1	<1
	170.8	<1	167.3	<1	175.5	<1

表-1 Ca 飽和交換吸着体の洗淨試験

1. Ca 飽和交換吸着体の作成

交換吸着体としてはアンバーライト IR-120B

(44 meq/g), グリーンサンド (0.51 meq/g), KUR砂 (0.031 meq/g) を用い、 Ca^{2+} として硝酸カルシウムを用いた。200 ml のビーカーに各交換吸着体もろろづつ取り、それぞれ 20,000 ppm (as Ca^{2+}) の Ca 溶液を 150 ml づつ添加した。時々攪拌しながら約 2 時間放置し、その後、1 度溶液をビーカーから流し出し、再び 20,000 ppm Ca 溶液 150 ml をビーカーに添加して、時々攪拌しながら 24 時間放置した。24 時間後に Ca 溶液を流し出し、ついで約 150 ml の純水で洗淨し、洗淨水を流し出すという操作を 3 度繰り返した。この結果交換吸着体の粒子間の空間の水中の Ca^{2+} は洗淨できたと考えられるが、吸着体内部の間隙水中にはまだ Ca^{2+} が存在すると考えられるので、再び純水を添加し、時々攪拌しながら 24 時間放置した。24 時間後の洗淨水中の Ca^{2+} 濃度を測定し、再び洗淨水を入れ替えて同じ操作を繰り返して、 Ca^{2+} を測定した。測定結果は表-1 に示したが、これらの操作によって間隙水の中に存在した Ca^{2+} が洗い出され、交換吸着体に吸着した Ca^{2+} が溶け出したものではないことが表-1 より読みとれる。最終の回の洗淨水を流し出し、一部残留した洗淨水を減圧乾燥してクルシウム飽和交換吸着体の作成を終了した。なお Ca 飽和交換吸着体に種々の濃度の Ca 溶液を添加して 24 時間経過しても、溶液中の Ca^{2+} 濃度は変化しないことも合わせて確認した。

2. 吸着型式の検討

溶液中の Ca^{2+} 濃度が一定の時に放射性陽イオン A が Ca 飽和交換吸着体に吸着する型式の一般にラングミュア吸着の吸着イオンの希薄な時、すなわち $\theta_A = K_{dA} \cdot C_A$ (1) に近く一致するといわれている。ただし、 θ_A は放射性陽イオン A の吸着量、 K_{dA} は同じく分配係数、 C_A は同じく溶液中濃度である。そこで放射性陽イオンとして、 ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{86}Sr , ^{133}Ba を用いて吸着実験を行った。 Ca^{2+} 濃度を 20

ppm (as Ca^{++}) とし、前述3種の Ca 飽和交換吸着体3つづつを用い、7種の放射性陽イオンの溶液中濃度を2桁程度 ($10^{-10}\text{Ci/ml} \sim 10^{-3}\text{Ci/ml}$) 変化させて、ビーカー内で吸着実験を行った結果、実験に用いた放射性陽イオンの吸着型式は、 Ca^{++} 濃度が一定の時に、前述(1)式で示されることを知った。

3. Ca^{++} 濃度が増加する時の分配係数

Ca^{++} 濃度が、5, 15, 50, 150, 500, 2,000 ppm (as Ca^{++}) 程度の6種の溶液を硝酸カルシウムと純水を用いて作成した。これらの溶液の中へ7種の放射性陽イオンをそれぞれ 10^{-10}Ci/ml 程度の濃度になるように別々に添加して、計42種の原水を作成した。つぎに3種の交換吸着体を200 ml のビーカーに3つづつ取り、前述のカルシウム水によって Ca 飽和交換吸着体を作成した。ここへ前述の原水を添加し、時々攪拌しながら24時間その状態を保った。原水の放射能濃度および Ca^{++} 濃度、 NaI シンチレーションカウンタおよび EDTA 法であらかじめ測定した。また添加原水量の重量を測定して求めた。24時間経過後のビーカー内の液をろ紙でろ過し、ろ液の放射能濃度および Ca^{++} 濃度を測定した。同時にろ液の pH の測定も行ったが、すべてのろ液の pH は 6.0 ~ 7.0 の範囲内であった。なお、24時間経過中の室温は $20^\circ\text{C} \sim 25^\circ\text{C}$ が保たれた。また同一試験条件下2組の実験を行った。実験結果から交換吸着体へ吸着された放射性陽イオンの吸着量を求め、この値から(1)式の分配係数 K_d を計算した。

各放射性陽イオンの分配係数 K_d は溶液中の Ca^{++} 濃度と大きく影響される事がわかったので、横軸に Ca^{++} 濃度、たて軸に分配係数値をそれぞれ対数目盛でとり、分配係数値と Ca^{++} 濃度との関係をグラフより求めることにした。グラフの一部を図-1に示した。図-1はグリーンサンドに対する実験結果の一部である。実験結果をグラフより解析してみると、図-1でもわかるように、すべての交換吸着体に関して、各放射性陽イオンの分配係数値と Ca^{++} 濃度との関係は同対数紙上で直線関係にあることがわかった。すなわち Ca^{++} 濃度も Ca とすると次のように書くことができる。

$$K_d = m \cdot (\text{Ca})^{-n} \quad (2)$$

ただし、 m , n は放射性陽イオンおよび交換吸着体の種類によって定まる Ca^{++} に特有の定数である。なお(2)式は実験式ではあるが、ラングミュアの吸着説から、放射性陽イオンのように微量なイオンの吸着現象は(2)式のような型式で示されることが推測されたが、ここでは省略した。

最後に、 Ca^{++} 濃度を工学的に実用度の高い ppm で表示し、分配係数値を ml/g で表示した時の m , n 値を各放射性陽イオンごとに、各交換吸着体についてグラフより大まかに求めて表-2に示した。表-2に示された m , n 値は主として、放射性陽イオンのみかけの電荷の数、水和イオン半径および交換吸着体の種類等によって決定されるが、これらの考察に関しては次回に報告する予定である。

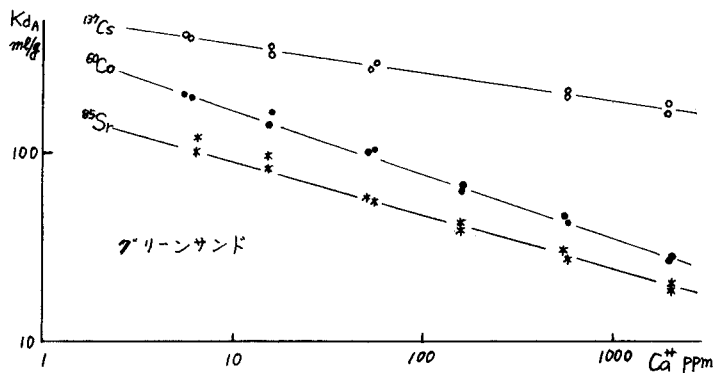


図-1 放射性陽イオンの分配係数と Ca^{++} 濃度の関係

放射性 陽イオン	アンバーライト IR-120B		グリーンサンド		KUR砂	
	m値	n値	m値	n値	m値	n値
^{22}Na	120	0.98	38	0.25	40	0.17
^{137}Cs	1200	0.78	410	0.15	3000	0.26
^{54}Mn	2300	0.64	200	0.32	200	0.53
^{60}Co	2800	0.65	410	0.38	640	0.67
^{65}Zn	1500	0.58	600	0.40	700	0.57
^{85}Sr	800	0.39	170	0.31	140	0.93
^{133}Ba	1200	0.39	350	0.29	780	0.48

表-2 放射性陽イオンの m , n 値