

京都大学原子炉実験所 正員 筒井天尊

京都大学原子炉実験所 正員 ○西牧研壯

前回は、地下水中には非放射性イオンとして Ca^{++} のみが存在すると単純化して考えた地下帯水層中で微量の放射性陽イオンが混入した地下水が流れる場合の放射性陽イオンの吸着現象すなわち分配係数値の変化について実験的研究を行った。この結果、液相中の Ca^{++} 濃度が変化しない時には、 Ca 飽和交換吸着体に対する放射性陽イオン A の分配係数値 K_d は一定であり、液相中の Ca^{++} 濃度が変化するときには、次式 $K_{d \text{ for Ca}} = m_{\text{Ca}} \cdot (\text{Ca})^{-n_{\text{Ca}}}$ (1) で表わされる実験式が適用しうることを示した。(Ca は Ca^{++} の液相中濃度である。)

そこで今回は、吸着現象を比較する上で重要な交換吸着体の交換吸着の座の数が測定方法によって変化するかどうかを調べるため数種類の陽イオンを用いて交換吸着体の交換容量 (交換吸着の座の数) を測定し、比較した。

つぎに Mg^{++} および Na^{+} 飽和交換吸着体に対する放射性陽イオンの分配係数値と液相中の Mg^{++} および Na^{+} との関係を実験で求めた。

実験に使用した放射性陽イオンは ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{55}Fe , ^{86}Sr および ^{133}Ba で、交換吸着体はアンバーライト IR-120B, ケリーサンクトおよび KUR 砂である。

1. 交換容量の測定

交換容量の測定に使用した陽イオンは NH_4^{+} , Ca^{++} , Mg^{++} , Na^{+} および Cs^{+} で KUR 砂に用いる実験条件を第 1 表に示した。実験方法を次に簡単に列挙する。

NH_4^{+} ... 酢酸アンモニウム法

Ca^{++} ... 交換吸着体を Ca^{++} で飽和させた後、 Na^{+} で Ca^{++} を追い出し、溶出した Ca^{++} 量を定量して算出した。

Mg^{++} ... Ca^{++} の場合と同じ方法

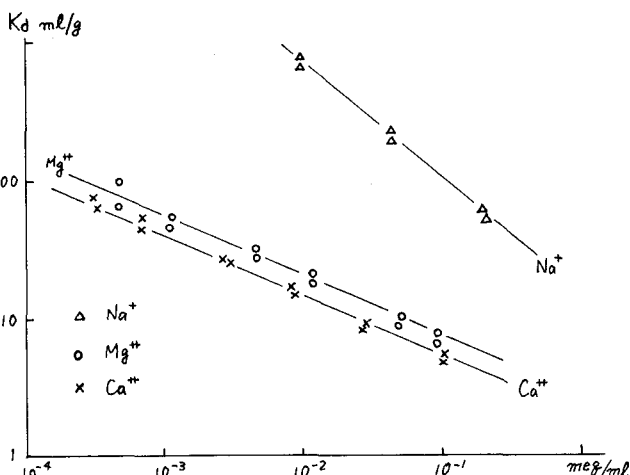
Na^{+} ... Na^{+} で飽和させた後、 Ca^{++} で Na^{+} を追い出し、溶出した Na^{+} 量を定量して算出した。

Cs^{+} ... リジストレーオとして ^{137}Cs を添加して、吸着前後の液相中の Cs^{+} 濃度の変化を測定して算出した。

実験結果のうち、KUR 砂に関するものを

陽イオン	実験法	溶 液	溶液量 ml	接触時間 hr	交換吸着体重量 g	交換容量 meq/g
NH_4^{+}	バッチ法	1N- NH_4COOH	100	2	50	0.030
Ca^{++}	πラム法	1N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	500	5	20	0.031
	πラム法	0.01N- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	7200	72	20	0.031
Mg^{++}	πラム法	1N- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	500	5	20	0.029
	πラム法	0.01N- $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$	7200	72	20	0.031
Na^{+}	πラム法	1N- NaNO_3	500	5	20	0.030
	πラム法	0.01N- NaNO_3	7200	72	20	0.030
Cs^{+}	バッチ法	0.1N- CsNO_3	150	24	10	0.033

第 1 表 KUR 砂の交換容量の測定



第 1 図 KUR 砂に対する ^{86}Sr の分配係数

第1表に示した。第1表をみると、どの陽イオンで測定しても、交換容量はほぼ同じ値が得られ、粘土鉱物への特異吸着が知られるCsで測定しても、他のイオンで測定したものより、やや大きい程度でほぼ同じような値が得られた。なお表には示さなかったが、アンバーライトIR-120B およびグリーンサントに關しても同じような実験結果が得られた。

2. Mg^{++} の影響

10,000 ppm (Mg^{++} として) マグネシウム溶液(硝酸マグネシウム)を用いて各交換吸着体の Mg 化を行ない Mg 飽和交換吸着体を作成した。つぎに Mg^{++} 濃度が 1,000, 500, 150, 50, 15, 5 ppm 程度で各放射性陽イオンが $10^{-2} \mu Ci/ml$ 程度別々に添加された種々の原水(交換吸着体との接触液)を作成した。セーカ内にある Mg 飽和交換吸着体3gずつと各種原水150 ml 程度ずつを24時間接触させた。24時間後には溶液をろ過してろ液の放射能濃度および Mg^{++} 濃度を測定した。 Mg^{++} 濃度は吸着

第2表 Mg^{++} の影響 ($K_{d \text{ for } Mg} \dots ml/g$, $C_Mg \dots 10^{-3} \text{ meq/ml}$)

放射性陽イオン	アンバーライトIR-120B		7"グリーンサント		KUR 砂	
	m_{Mg}	n_{Mg}	m_{Mg}	n_{Mg}	m_{Mg}	n_{Mg}
^{22}Na	37	0.45	24	0.23	35	0.21
^{137}Cs	340	0.46	240	0.18	1900	0.25
^{54}Mn	450	0.63	110	0.35	56	0.52
^{60}Co	510	0.65	180	0.36	120	0.65
^{65}Zn	380	0.60	270	0.38	190	0.60
^{85}Sr	290	0.38	90	0.30	51	0.44
^{133}Ba	500	0.39	210	0.30	270	0.46

実験の前後で変化しなかった。吸着実験の前後の各放射性陽イオンの液中濃度変化および添加原水の量などから Mg^{++} 濃度に対応する各放射性陽イオンの分配係数を求めた。実験結果のうち KUR 砂に対する Mg^{++} 濃度と ^{85}Sr の分配係数との関係を示すものを第1図に示した。第1図は Ca^{++} , Mg^{++} および Na^{+} の影響を同時に比較するため、たて軸に分配係数値を ml/g 単位で、横軸に非放射性陽イオンの液中濃度も meq/ml 単位で両対数紙上に示したものである。第1図より明らかに

なように、 Mg^{++} 濃度と各放射性陽イオンAの分配係数値との間に直線関係が認められたので次の実験式が得られた。 $K_{d \text{ for } Mg} = m_{Mg} (C_{Mg})^{-n_{Mg}} \dots (2)$ (2)式に示された m_{Mg} , n_{Mg} の値はそれぞれ第2表に示した。なおこの時の $K_{d \text{ for } Mg}$ は ml/g で、 C_{Mg} は 10^{-3} meq/ml (約12 ppm)で表示した。

3. Na^{+} の影響

20,000 ppm (Na^{+} として) ナトリウム溶液(硝酸ナトリウム)を用いてナトリウム飽和交換吸着体を作成した。 Mg^{++} の時と同

第3表 Na^{+} の影響 ($K_{d \text{ for } Na} \dots ml/g$, $C_{Na} \dots 10^{-3} \text{ meq/ml}$)

放射性陽イオン	アンバーライトIR-120B		7"グリーンサント		KUR 砂	
	m_{Na}	n_{Na}	m_{Na}	n_{Na}	m_{Na}	n_{Na}
^{137}Cs	1600	0.67	600	0.12	1000	0.40
^{54}Mn	4400	0.61	3400	0.64	4500	0.80
^{60}Co	4500	0.60	3100	0.66	4600	0.84
^{65}Zn	4300	0.58	2900	0.63	4800	0.83
^{85}Sr	3800	0.54	2800	0.65	4000	0.81
^{133}Ba	3900	0.52	2900	0.61	3600	0.80

様に Na^{+} 濃度が 5,000, 1,000, 200, 50 ppm 程度で各放射性陽イオンが $10^{-2} \mu Ci/ml$ 程度別々に含まれる種々の原水を作成した。 Mg^{++} の時と同様に交換吸着体と原水とを接触させ吸着実験を行なった。この結果、各 Na^{+} 濃度に対応する各放射性陽イオンの分配係数が得られた。このうち KUR 砂に關する Na^{+} 濃度と ^{85}Sr の分配係数との関係を示すものを第1図に併せて示した。第1図にも示されているように、 Na^{+} に關しても Ca^{++} や Mg^{++} の時と同様に次の実験式が得られた。 $K_{d \text{ for } Na} = m_{Na} (C_{Na})^{-n_{Na}} \dots (3)$ (3)式に示された m_{Na} , n_{Na} の値はそれぞれ第3表に示した。なお第3表を求めるにあたっては、やはり $K_{d \text{ for } Na}$ は ml/g で、 C_{Na} は 10^{-3} meq/ml (約23 ppm)で表示した。