

(財)電力中央研究所・土木技術研究所
Division of Biological Sciences,
National Research Council, Canada.

正員 ○馬原 保典
Akira Kudo

1. はじめに; 原子力発電所の運転開始以来、現在までに多量の放射性廃棄物が発生している。これらの中で原子炉の平常運転によって排出される比較的放射能レベルの低い、しかも容積の大きな低レベル廃棄物の中には、放射性コバルトが少なからず含まれている。特に、 ^{60}Co (コバルト-60)は、高エネルギー γ 線放射体であり物理的半減期も5.3年と比較的長い。その上、コバルトは、 B_{12} の核として動物にとっては、必要不可欠な元素でもある(1)。したがって、 ^{60}Co が生体に取り込まれる可能性は、きわめて高く非常に危険な放射性核種として注意が払われなければならないであろう。

本研究では、実験室内で海水と底質の造る模擬環境に ^{60}Co を投入し種々の環境因子を変化させながら ^{60}Co の持つmobilityの大きさを測定した。更に、模擬環境内で造られた最も大きなmobilityを有する ^{60}Co が海水中でどのような化学形態を持っているかについても検討を加えた。

2. 実験方法; 砂底質(Sand Sediments)と人工海水からなる系に ^{60}Co ($^{60}\text{CoCl}_2$)を加え十分に相互反応させた後に ^{60}Co の系内での分布を調べた。

実験に用いた砂底質は、オタワ河の主流で採取された礫、中細砂、シルト、粘土の混合物で有効粒径 $620\mu\text{m}$ (対数標準偏差0.329)で、陽イオン交換容量は、風乾試料100g当り0.67meqであった(2)。

^{60}Co の底質および海水との相互反応は、好気性条件あるいは嫌気性条件下で30日間続けられた。この実験終了後海水相中に残存する ^{60}Co の割合を放射能測定を行なうことによって決定した。

系に加えた ^{60}Co の80%以上が海水相に残った嫌気条件の海水サンプルをセロファン膜(pore size 24Å)によって透析させ、膜を通過する ^{60}Co と通過しない巨大分子物質と化合している ^{60}Co とを分離した。透析可能な ^{60}Co に対してキレート剤+溶媒(dithizone-benzene)抽出法によってionic ^{60}Co とnon-ionic ^{60}Co と思われるものとに分離した。更に、dithizone-benzene抽出法によって抽出されなかった ^{60}Co については、サンプル溶液を10倍に低温真空濃縮した後G.F.C(gel filtration chromatography)によって分離展開し、EDTA- ^{60}Co ionic ^{60}Co の展開グラフと比較することによって、その ^{60}Co 化合物のおおよその分子量を推定した。この分離展開には、内径2.5(cm)高さ45(cm)に水和Bio-Gel(P2)をパッキングしたゲル・カラムを用いた。

3. 結果と考察; 砂底質の持つ ^{60}Co に対するKd(分配係数)値が環境因子(PHおよび酸化還元条件)の変化によって影響を受ける様子とFig.1.に示す。この図は、好気条件の下で得られたKd(^{60}Co)と嫌気条件の下で得られたKd(^{60}Co)の比を海水のPH値に対してプロットしたものである。嫌気条件下での砂底質のKdが、PHに依存することなくほぼ一定のKd=2.0程度であったことを考慮に入れて、Fig.1.を眺めると好気条件下でのKdが海水の持つPH値によって大きく変動することが判るであろう。一般に、自然界に存在する海水のPHが、ほぼ7.0~8.5の範囲にあることを考慮すると、本実験において用いた砂底質に対しては、好気条件下では、嫌気条件下でよりも10倍も強く ^{60}Co は、底質によって固定されたことになる。この砂底質によって、 ^{60}Co が最も強く吸着

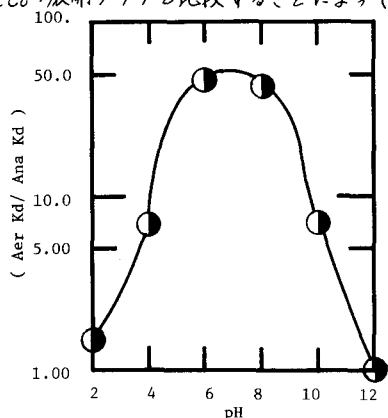


Fig.1. Magnitude of the relative distribution coefficient of ^{60}Co varying with pHs of seawater (Aer Kd:magnitude of the distribution coefficient of ^{60}Co measured under aerobic conditions, Ana Kd: magnitude of the distribution coefficient of ^{60}Co measured under anaerobic conditions, Aer Kd/Ana Kd: Aer Kd normalized by Ana Kd (based on the constant Kd=2.0))

とれるのは、好気条件下でしかもPH=6.0付近であり、その際に K_d は、 $K_d \times 60$ にも達している。 ^{60}Co と底質を相互反応させ、 ^{60}Co を底質上に安定に強く固定するためには、水のPHは、ほぼ中性でしかも環境系は、十分に酸素の供給のある好気状態に保っておく必要があると思われる。

Mobile ^{60}Co (嫌気条件で底質-海水系で相互反応で造られた大きなmobilityを持つ ^{60}Co と以後このように呼ぶこととする)を含む海水サンプルと24Aの細孔を持つdialysis membraneで透析した結果mobile ^{60}Co のほぼ50%がdialysis membraneを通過した。この透過結果は、PH値および被透析溶液のイオン強度によっても影響されることもなかった。一方、同時に同じ手順でionic ^{60}Co を同じdialysis membraneで透析した結果ionic ^{60}Co のほぼ60%が、この膜を通過した。これらの透析結果と比較することによって、mobile ^{60}Co はionic ^{60}Co か、あるいは、 ^{60}Co の低分子化合物ではないかと推定した。

仮に、mobile ^{60}Co がionic ^{60}Co であるならば、適当なPHの下で、

dithizoneと反応させキレート化合物を作り有機溶媒(hexane)相に抽出することが可能である。このdithizone-hexane抽出法によるmobile ^{60}Co 抽出結果と比較のために行なったionic ^{60}Co の抽出結果とをFig. 2に示す。

これによれば、PH=5.0~PH=8.0の範囲で90%以上のionic ^{60}Co が、海水中よりhexane相に抽出されたのに対し、mobile ^{60}Co は、殆んどdithizoneとキレート錯体を作るともなく、(したがってhexane相に抽出されることもなく、きわめて安定した状態で海水中に存在していた。その際の抽出率は、わずか2%以下という結果を得た。従ってmobile ^{60}Co の殆んどはionic ^{60}Co ではなく、海水中に溶存している低分子物質と反応し錯体と形成し海水相中に存在しているものと思われる。Mobile ^{60}Co 、EDTA- ^{60}Co と ^{60}Co を含む海水溶液各々1mlをG.F.Cで展開させた結果とFig. 3に示す。ここで用いたゲル剤の分離特性(分子分画100~1000)を考慮して結果を眺めると、mobile ^{60}Co は、 ^{60}Co のEDTA錯体よりも小さな分子量を持ち、しかもそれは、 CoCl_2 とほぼ同程度の分子量を持つコバルト錯体化合物の集合体から形成されているものと推定される。米国の放射性廃棄物地中処分場においては、低レベル地中から ^{60}Co の地中での移動が報告されている(3)。その多くの原因は、 ^{60}Co と人工キレート剤との錯体形成が主で、天然に存在するキレート剤との錯体形成の影響は小さいと言われている(4)。しかしながら、本実験結果は特に人工キレート剤が存在しなくともある条件(特に還元状態)の下では、 ^{60}Co は十分にmobilityの高い安定した化合物と形成することが可能であること示唆している。

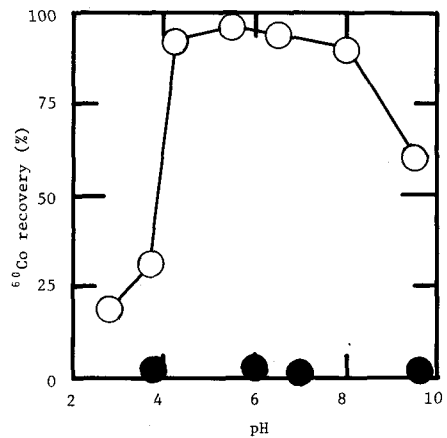


Fig. 2. Comparison between recovery of mobile ^{60}Co in seawater under anaerobic conditions by dithizone-benzene and recovery of ionic ^{60}Co . (●: ^{60}Co in seawater under anaerobic, ○: ionic ^{60}Co)

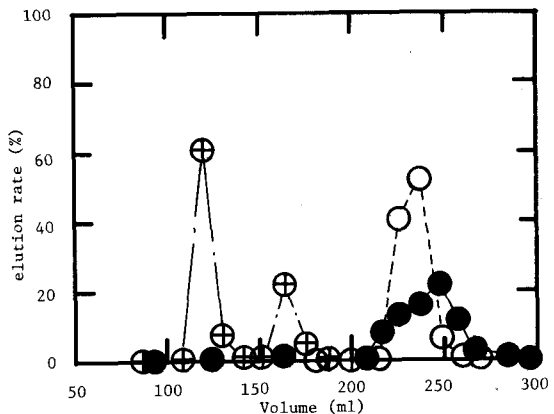


Fig. 3. The G.F.C. elution profiles of various forms of ^{60}Co in seawater. (○: ionic ^{60}Co , ⊕: ^{60}Co bound with EDTA, ●: mobile ^{60}Co produced under anaerobic conditions)

References

- (1) Zajic, J., (1969), "Microbes and Cobalt" in Ch. 10, Microbial Biogeochemistry, Academic Press, New York and London.
- (2) Kudo, A., and Hart, J.S., (1974), "Uptake of Inorganic Mercury by Bed Sediments", Environ. Qual., 3, p. 273-278.
- (3) Means, J.L., Crerar, D.A., and Duguid, J.O., (1976), "Chemical Mechanism of ^{60}Co Transport in Groundwater from Intermediate-Level Liquid Waste Trench 7", ORNL/TM-5348.
- (4) Means, J.L., Crerar, D.A., and Duguid, J.O., "Migration of Radioactive Wastes: Radionuclide Mobilization by Complexing Agents", Science, 200, p. 1477-1478.