

財団法人 電力中央研究所 正員 満本泰郎
財団法人 電力中央研究所 正員 河西 基
○大成建設(株)技術研究所 正員 名倉克博
大成建設(株)技術研究所 正員 今村 聡

1. はじめに

我国は、一部の沖積平野を除いて、ほとんどが火山灰土で覆われている。これらの火山灰土の特性は、工学的、農学的見地から日本の特殊土として、多くの研究がなされ、国土建設に利用されている。近年低・中レベルの放射性廃棄物の処理施設の建設が検討されているが、日本のほぼ全域を覆う火山灰土の物性そのものから、アプローチを行なうことはその安全性検討のためには重要な方法論と考えられる。

本報は、粘土鉱物組成の異なる2種の火山灰土を用いてCo, Cs, Srの吸着試験を実施し、これらの三成分の分配係数濃度依存性、選択吸着性について検討した。

2. 試験方法

試験に供した試料は、立川ロームと常総粘土の2種の風乾試料を用いた。試料は2mm#のふるい通過試料を用いた。表-1に試料の物理化学特性を示す。試料を調整する際には、10kg程度の土をよく混ぜ試料に偏りがないようにした。吸着量を測定する核種は、Co, Sr, Csであり、実験にはその硝酸塩を用いた。以下にその実験手順を示す。

①土壌試料を絶乾土で2.5gになるようにとる。②遠心管に土壌および飽和溶液を25ml加える。飽和溶液は脱塩水に核種の量種類を適宜変え作製した。③遠心管に栓をした後、振とう機で5時間振とうした。(振とう時間の影響をみるために、1 day, 3 day, 7 dayの試験も行なった。)④12000rpmで5分間遠心分離し、上澄液を試験管に分離する。試験管に分離した後原子吸光分析を行ない、溶液中の核種の量を測定し分配係数その他を算出した。

3. 試験結果

(1) 吸着反応の時間依存性

吸着反応の時間依存性をみるために、振とう時間を5 hour, 1 day, 3 day, 7 dayと変えて、吸着試験を行なった。飽和溶液は、Co, Sr, Csの各単1成分のみを混入したものを用い、その初期濃度は0.001Mである。図-1に分配係数の時間変化を示した図を示す。図-1から明らかなように、時間依存性はほとんどなく5 hourの振とう時間で十分なことが判明した。以後の実験は5 hourで行なった。なお分配係数は式(1)を用いて算出した。

表-1 試料の物理化学特性					立川ローム	常総粘土
粒 度 特 性	細砂分(0.042~0.074mm) %				6.8	41.8
	シルト分(0.074~0.005mm) %				68.2	25.4
	粘土分(0.005~0.001mm) %				14.7	7.1
	コロイド分(0.001mm以下) %				10.3	25.7
最大粒径 mm					0.84	2.0
チコン ンシ モイス	液性限界 W %				168.00	158.4
	塑性限界 Wp %				97.03	58.7
	塑性指数 Ip				70.97	99.7
自然 状 態	含水比 W %				124.7	76.1
	湿潤密度 ρ g/cm ³				1.38	1.48
	空隙率 n				0.77	0.72
交 換 性 イ オ ン	Na ⁺ meq/100g				0.48	0.80
	K ⁺ meq/100g				0.18	0.29
	Ca ⁺⁺ meq/100g				1.1	9.3
	Mg ⁺⁺ meq/100g				2.1	13.8
	Total meq/100g				3.86	24.19
陽イオン交換容量(C.E.C) meq/100g					31.9	43.0
陽基陰和度 %					12.1	56.3
アロフェン含有量 %					24.0	3.0
水素イオン濃度 PH					5.9	6.1

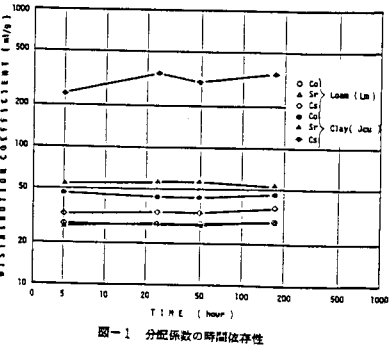


図-1 分配係数の時間依存性

$$K_d, A = \frac{\text{土壌中のイオンAの濃度 (meq/100g)}}{\text{溶液中のイオンAの濃度 (meq/100ml)}} \quad (1)$$

(2) 吸着反応の初期濃度依存性

吸着反応の初期濃度依存性をみるために、飽和溶液の初期濃度を0.2M, 0.1M, 0.01M, 10 M, 10 M, 10 Mと変えて吸着試験を行なった。図-2に単一成分系の結果を示す。図-2から、分配係数は明らかな初期濃度依存性を持ち、初期濃度が高くなるに従い分配係数が低くなる傾向にあり、両対数紙上で直線関数を示す。

土壌間、核種間の差は、あまり認められなかった。今回対象とした土壌は、同程度のCECをもつが、その吸着主体となる粘土鉱物は全く違っており立川ロームは非晶質のアロフェンを主体とするのに対し、常総粘土はメタハロイサイトを主体としている。主体となる交換性陽イオンの種類も、立川ロームと常総粘土では、全く異っており前者はその塩基飽和度が低くPHがほぼ中性域であることから、塩基性ナトリウムイオンであると考えられ、後者は、EXCの試験結果から Ca^{2+} 、 Mg^{2+} であると考えられる。表-1のアロフェン含有量と塩基飽和度とは、逆比例の関係にあり、上述の結果を裏づけている。このように化学特性の違う2種の土壌に対して、Co, Sr, Csの分配係数はほとんど影響を受けない。このことは、CECのみによってCo, Sr, Csの分配係数を決定できる可能性を示唆するものである。

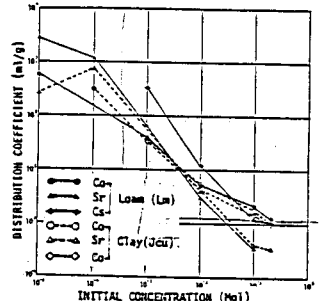


図-2 分配係数の初期濃度依存性

(3) 選択吸着現象

3種の核種Co, Sr, Csの競合吸着現象を検討するために、飽和溶液に2種の核種を混入したもの(2成分系と呼ぶ)と4種の核種を混入したもの(4成分系と呼ぶ)を用い、吸着試験を行なった。

図-3、図-4、図-5に2成分系、4成分系でのイオン交換平衡を示す図を揚げた。ばらつきが多く、概略的なことしか判断できないが、 Co^{2+} は Sr^{2+} より若干その分配係数が高く、 Cs^{+} とほぼ同一の分配係数値を示す。 Sr^{2+} は Cs^{+} より若干その分配係数が小さい。等価イオンどうしの場合、分配係数の比はどちらの核種がより選択的に吸収されるかを示し、 Co^{2+} は Sr^{2+} より選択的に吸着保持されるといえる。異価イオンの場合、選択係数は分配係数の2次式で表されるとともに、その平衡濃度にも依存し、どちらが選択的に保持されるかは明らかでない。図-6には単

1成分系、2成分系、4成分系を問わずに、その平衡濃度と吸着量を両対数紙上にプロットしたものを示す。これから、混入成分数に関わらず、Co, Sr, Csの吸着量はその平衡濃度のみに依存していることがわかる。Freundlich型の吸着等温式が適用可能であるとおもわれる。

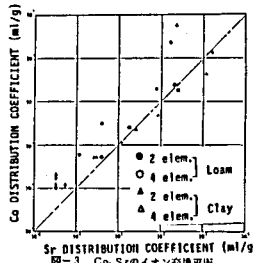


図-3 Co, Srのイオン交換平衡

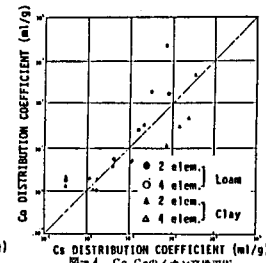


図-4 Co, Csのイオン交換平衡

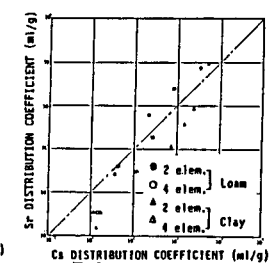


図-5 Sr, Csのイオン交換平衡

4. おわりに

本研究では、2種の火山灰質土を用い、その時間依存性、初期濃度依存性、交換機構の検討、選択吸着現象の検討を行なった。今回はバッチ法でのみ実験を行なったが、今後はカラム法による実験や多くの土壌試料での実験を積み重ね、一般的な土質パラメーターとの関係づけを行なっていく予定である。

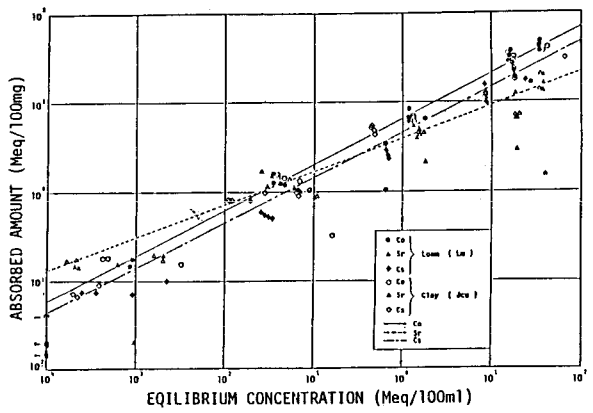


図-6 平衡濃度と吸着量