

II-515

自然環境中の安定同位元素を利用した分配係数の簡易測定法の検討

— ストロンチウムへの適用 —

(財) 電力中央研究所 正員 ○五十嵐敏文, 馬原 保典

(財) 九州環境管理協会 芦川 信雄, 岡村 正紀

1. はじめに

各種溶質の地中移行挙動を評価する場合, 見かけ上溶質の固相濃度と液相濃度との比で定義される分配係数(distribution coefficient)Kdが吸着指標として頻繁に使用されている。Kdを吸着指標とする, いわゆるヘンリー型のモデルでは, 1指標だけで溶質吸着特性を評価できるため評価が簡単になり, また地下水と溶質の地中移行速度の比である遅延係数を容易に見積もることができる。しかし, 溶質の吸着現象に関するあらゆる因子をKdに組み込まなければならぬために, 原位置の条件に見合う適切なKd値を設定する必要がある。Kdの測定には, 従来よりバッチ法やカラム法が主に用いられてきたが, このような室内による試験では原位置の条件を完璧に模擬することはできない。そのため, 原位置の条件を十分反映する簡便な測定方法を検討することは, より現実的な評価をする上で重要であると考えられる。本報では, 自然環境中の安定同位元素を利用することによってKdを測定する方法について検討した。溶質には, 放射性廃棄物中に含まれる主要核種の一つであり, 自然環境中のバックグラウンド濃度も比較的高いストロンチウム(Sr)を選択した。

2. 自然環境中の安定同位元素の固液相濃度比からの分配係数測定法の考え方

天然における安定同位元素の存在比は, 極めて恒常的であって変動が少ないことが知られている。このことから, ある土壌・地下水系あるいは岩盤・地下水系においてバックグラウンドとして存在する自然環境中の安定同位元素の固液相濃度比が一定であるとする。この系にバックグラウンド濃度と比較して十分に低い濃度の放射性核種が流入した場合, 各元素の挙動は質量数にはほとんど依存しないので, 流入した放射性核種の固液相濃度比は, 同位体交換反応等を通して放射性核種流入前の安定同位元素の固液相濃度比に一致すると考えられる。すなわち, バックグラウンドの安定同位元素の固液相濃度比をそのまま放射性核種のKdとして適用できることが期待される。本報で提案する放射性核種のKd測定法は, 上記の考え方にに基づき, バックグラウンドの極低濃度の安定同位元素の固液相濃度を測定し, その濃度比を放射性核種のKdとする方法である。ここでは, バッチ法のような従来法で得られる固液相濃度比を分配係数Kdと呼び, 自然環境中の安定同位元素の固液相濃度比を

分配比(distribution

ratio)Rdと呼ぶことに

よって, 便宜上両者を区

別することにする。Kdと

Rdとが一致すれば, Kdを別途実験

で測定しなくてもRdから求めるこ

とができる。

3. 用いた試料と試験方法

3.1 試料 SrのKd値とRd値とを

比較するための試料は, 表-1に

示す地下水とその帯水層を構成す

る地盤材料(土壌, 岩盤)である。

試料1の固相試料は砂であり, 試

料2および3の固相試料は花崗岩

表-1 KdとRdの測定に供した試料

No	試料	採取深度
1	湧水 (被圧砂層)	地表面
2	トンネルにおける浸出地下水 (花崗岩)	GL-400m
3	トンネルにおける浸出地下水 (頁岩)	GL-400m

* () 内は地層の条件を示す。

表-3 砂および粉末岩石試料の物理化学特性

試料	1	2	3
比重	2.80	2.64	2.74
粒度分布			
粘土 (%)	1	0	0
シルト (%)	9	0	0
砂 (%)	90	100**	100**
pH (H ₂ O)	7.4	8.9	7.8
pH (KCl)	5.1	8.1	7.7
CEC (meq/100g) **	18	2.6	4.6
EXC (meq/100g) **			
Ca	7.9	2.1	11
Mg	3.5	0.06	0.52
Na	2.0	0.20	0.23
K	1.2	0.09	0.36

** 0.074~0.42mm

** IN Ca(NO₃)₂置換, IN NaCl抽出法** IN CH₃COONH₄抽出法

表-2 地下水試料の性状

地下水	1	2	3
pH	8.0	8.3	8.1
EC (μS/cm) †	122	115	173
Ca (mg/ℓ)	6.3	14	19
Mg (mg/ℓ)	2.4	0.85	4.8
Na (mg/ℓ)	12	7.4	11
K (mg/ℓ)	1.1	1.2	0.43
Cl (mg/ℓ)	17	6.7	ND
HCO ₃ (mg/ℓ)	32	39	90
SO ₄ (mg/ℓ)	2.1	9.9	15
NO ₃ (mg/ℓ)	0.9	3.1	0.3
Sr (μg/ℓ)	25	150	2600

† 25℃換算値

表-4 酢酸アンモニウムを用いた抽出法による安定Srの溶出濃度と固液分配比

No	試料	ω (g/l)	qsr (μg/g)	Rd (ml/g)
1	1	1	79	3200
2	1	5	77	3200
3	4	20	2.7	18
4	4	100	2.5	17
5	5	10	54	21
6	5	50	38	15

と頁岩の粉碎試料である。ここで、岩盤試料は 0.074~0.42mmに粉碎後、現地地下水を用いて十分に洗浄・コンディショニングを行った。地下水試料の性状を表-2に示す。また、固相試料の性状を表-3に示す。

3.2 バッチ試験方法 バッチ試験に供した溶液は、あらかじめ0.45 μ m メンブレンフィルターを用いてろ過した採取地下水48mlに日本アイソトープ協会製の放射性 ^{85}Sr の塩化物溶液 1mlと所定濃度の安定Srの塩化物溶液 1mlを加え作製し、 ^{85}Sr が 30Bq/ml前後、安定Srが 0.025~10mg/lとなるように調整した。この溶液に、地盤材料を加え、室温で最低24hrs 振とうし、固液接触前後の ^{85}Sr と安定Srの液相濃度変化からそれぞれのKdを算出した。固液分離には0.45 μ m メンブレンフィルターを用い、 ^{85}Sr の分析にはGe半導体検出器、安定Srの分析には ICPを用いた。

3.3 安定Srの固液相濃度比の測定方法 液相中の安定Sr濃度は直接 ICPによって分析できるが、固相中の安定Sr濃度は一度溶解あるいは抽出して溶液の状態に相変化させる必要がある。ここでは、Srの主要吸着機構がイオン交換反応であることから¹⁾、0.1N酢酸アンモニウム溶液によって抽出可能な成分をSr吸着反応に関与する固相成分とした。

4. 試験結果

4.1 バッチ試験結果 図-1は、試料1の液相安定Sr濃度に対する安定SrのKd (Kds)と ^{85}Sr のKd (Kd₈₅)をプロットした。ここで、安定Srには本来の

地下水や土壌・岩盤中の安定Srと放射性 ^{85}Sr 溶液中の安定Srも含まれている。また、図-2および3にはそれぞれ試料2と試料3に対する結果を示す。これらの図から、液相安定Sr濃度の増加とともに、固液比に係わらずKdsやKd₈₅が両対数紙上で直線的に減少することがわかる。この傾向は、横軸に添加安定Sr濃度をプロットした場合のようなプラトー一部は認められなかった²⁾。

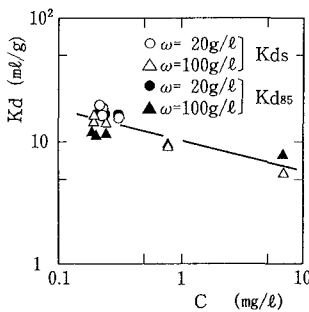
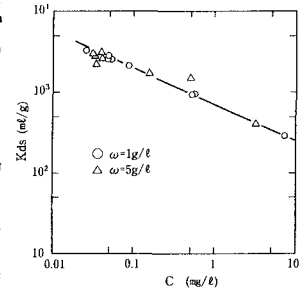
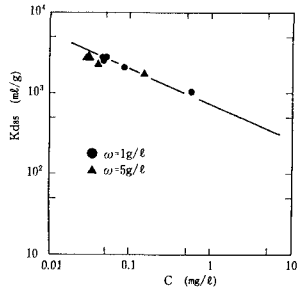


図-2 試料2のKdのSr濃度依存性



(a) Kds vs. C



(b) Kd85 vs. C

図-1 試料1のKdのSr濃度依存性

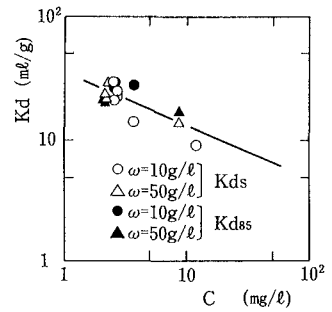


図-3 試料3のKdのSr濃度依存性

試料2のKdsとKd₈₅との関係は図-4のようになる。この図から、固液比や共存安定Sr濃度に関係なく、KdsとKd₈₅とは一致し、各プロットが図中に示されている勾配45°の直線上に位置することがわかる。さらに、固液接触時間である振とう時間を28日程度まで増加させてもこの傾向は変化しなかった。また、他の試料でも同様な結果が得られた。

4.2 安定Srの固液相濃度比 0.1N酢酸アンモニウム溶液によって抽出可能な安定Srの固相成分濃度とその値と地下水中の安定Sr濃度との比であるRdを表-4に示す。この表から、安定SrのRdは試料1で約3000ml/g、試料2と3で約20ml/gとなった。この値は、図-1~3に示す液相安定Srが本来の地下水中の濃度であるバックグラウンド濃度と等しい場合のKd値に対応することがわかる。すな

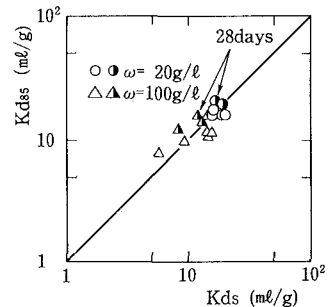


図-4 試料2のKd85とKd85との関係

わち、SrのRd値は共存安定Sr濃度が一致する場合、バッチ試験で得られる ^{85}Sr や安定SrのKd値に一致するといえる。上記の結果は、自然環境中の安定SrのRd値を利用してKdを測定できることを示唆するものである。

〔参考文献〕1)五十嵐；衛生工学論集, 26, 97(1990) 2)五十嵐他；RADIOISOTOPES, 41, 350 (1992)。