

VII-63

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
ーニッケルへの適用ー

(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を評価する場合、みかけ上、溶質の固相濃度と液相濃度の比で定義される分配係数 (distribution coefficient, 以下 K_d と呼ぶ) が主要な吸着指標として使用されている。 K_d を指標とするヘンリー型のモデルは、1 指標だけで溶質の吸着特性を表現できるため簡便であること、また地下水と溶質の地中移行速度の比である遅延係数 (retardation factor) を容易に見積もることができること等の利点を有する。しかし、溶質の吸着現象に関するすべての因子を K_d に組み込んでいるため、原位置条件を反映した適切な数値を設定する必要がある。 K_d 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、このような室内試験では、酸化還元雰囲気等の原位置環境を模擬することは難しい。従って、原位置条件を十分反映し、かつ簡便な K_d 測定法を確立することは重要である。既報では、自然環境中のバックグラウンドの安定同位元素濃度が数十 $\mu\text{g/L}$ ～数 mg/L の範囲にあったストロンチウム (Sr) に対して、バックグラウンド安定 Sr が放射性 Sr-85 と同じ K_d 値を示すことを明らかにした¹⁾。本報では、Sr 同様低レベル放射性廃棄物に含まれる放射性 Ni に対しても、自然環境中の安定 Ni を利用して放射性 Ni の K_d を測定する方法の妥当性を検討した。

2. 自然環境中の安定同位元素の固液相濃度分配比からの分配係数測定法

自然環境中の安定同位元素の固液相濃度が一定、すなわち固液相濃度比が一定の系に、安定同位元素濃度よりもはるか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ほとんど依存しないので、放射性核種の固液相濃度分配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分配比と一致すると考えられる。このことを利用して、自然環境中の安定同位元素の固液相濃度比を測定し、その値を対象放射性核種の K_d 値とする方法がここで提案する K_d 測定法である。本報では、便宜上、従来法であるバッチ試験で得られる値を K_d として、本手法で得られる値を R_d (distribution ratio) として区別することにする。

3. 試料および試験方法

3.1 試料 ある地点に掘削されたトンネルにおいて、液相としてはトンネル内への浸出地下水を、固相としては地下水浸出地点周辺の砂および岩石試料を試験に供した。表-1 には、固相の種類とその採取深度を示す。試料 1 は若干量の礫を含んでいたもので、粒径 2 mm 以上のものは除去し、また、試料 2、3 は粉碎後、0.074～0.42 mm にふるい分けを行い、さらに浸出地下水で洗浄後、固相試料に用いた。固液相試料の

物理化学的性状を表-2、3 にそれぞれ示す。

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 μm メンブレンフィルターを用いてろ過した浸出地

表-1 K_d および R_d の測定に使用した試料

試料番号	液相試料	固相試料	採取深度
1	トンネル内への浸出地下水	砂	GL. -5 m
2	トンネル内への浸出地下水	凝灰岩	GL. -20 m
3	トンネル内への浸出地下水	砂質凝灰岩	GL. -20 m

表-2 液相試料の水質

水質	試料 1	試料 2	試料 3
pH	7.1	7.4	7.7
EC ($\mu\text{S/cm}$)	103	115	119
Ca (mg/L)	3.9	5.6	6.4
Mg (mg/L)	2.7	2.7	3.3
Na (mg/L)	9.2	9.7	9.6
K (mg/L)	0.8	1.9	1.3
Cl (mg/L)	16	15	17
HCO ₃ (mg/L)	17	24	26
SO ₄ (mg/L)	1.9	2.0	2.0
Ni ($\mu\text{g/L}$)	4.1	5.5	5.4

表-3 固相試料の物理化学的性状

	試料 1	試料 2	試料 3
比重	2.62	2.31	2.6
粒度分布			
粘土 (%)	9	0	0
シルト (%)	4	0	0
砂 (%)	87	100	100
pH (H ₂ O)	7.5	7.8	8.2
pH (KCl)	5.1	6.3	6.3
CEC (meq/100g)	18	11	10
EXC (meq/100g)			
Ca	8.4	4.9	4.6
Mg	6.4	3.1	3.1
Na	0.11	0.11	0.02
K	0.26	0.47	0.33

下水 49.8 mL に、日本アイソトープ協会製の放射性 Ni-63 の塩化物溶液 0.1 mL と所定濃度の安定 Ni の塩化物溶液 0.1 mL を添加し調整した。溶液中の Ni-63 の初期濃度は 70 Bq/mL、安定 Ni の初期濃度は 5～1000 $\mu\text{g/L}$ であった。この溶液に、固相試料を加え（固液比 $\omega=1, 5 \text{ g/L}$ ）、室温で 1～7 日間振とうし、固液接触前後の Ni-63 および安定 Ni の液相濃度変化からそれぞれの K_d を算出した。なお、固液分離には 0.45 μm メンブレンフィルターを用い、Ni-63 の分析には液体シンチレーションカウンターを、安定 Ni の分析には ICP-MS 用いた。

3. 3 安定 Ni の固液相濃度分配比の測定方法 液相中の安定 Ni 濃度は ICP-MS により直接分析し、固相中の安定 Ni 濃度は、0.1N 酢酸アンモニウム溶液あるいは 0.1N 塩酸によって液相に抽出後 ICP-MS により分析した。その濃度比から、それぞれの抽出溶液に対する R_d 、すなわち R_{da} 、 R_{dh} を算出した。

4. 試験結果

4. 1 バッチ試験結果 試料 1、2、3 に対して、共存安定 Ni 濃度を变化させた場合の Ni-63 の K_d (K_{dr}) と安定 Ni の K_d (K_{ds}) の変化をそれぞれ図-1、2、3 に示す。なお、安定 Ni は、地下水試料や固相試料に元々含まれているので、バックグラウンド濃度である 4～6 $\mu\text{g/L}$ よりも液相濃度は低下しない。これらの図から、低濃度領域では若干データのバラツキはあるが、共存安定 Ni 濃度の増加とともに、 K_{ds} や K_{dr} が減少することがわかる。なお、共存安定 Ni 濃度および添加した安定 Ni の同伴陰イオンである Cl 濃度を除く条件、例えば pH や共存陽イオン濃度等は同一であった。

図-4 には、試料 3 に対する K_{dr} と K_{ds} との関係をプロットした。ここでは、固液比 ω と固液接触時間 t に関して凡例を区別しているが、 ω や t に係わらず K_{dr} と K_{ds} とは両対数紙上で勾配 45° の直線上にはば位置することがわかる。このことは、 K_d は質量数に依存しないことを示す。

4. 2 安定 Ni の固液相濃度比 0.1N 酢酸アンモニウム溶液あるいは 0.1N 塩酸によって固相から抽出された安定 Ni 濃度を固相濃度として、表-2 に示した液相安定 Ni 濃度との比から R_d を算出し、その結果を図-1～3 に示した。これらの図から、 R_d は液相安定 Ni 濃度がバックグラウンドレベルのときの K_{ds} や K_{dr} と一致することがわかる。このことは、自然環境中の安定 Ni 濃度の変化がない場合は、微量の放射性 Ni が流入しても、その K_d 値は変化しないことを示す。すなわち、Ni の場合も Sr 同様、 R_d から K_d を測定できることを示すものである。今後はこの手法の適用性を他核種へ拡張していく予定である。

<参考文献>

- (1) 五十嵐他；第 48 回土木学会年講、II-515、p. 1126, 1993
- (2) 五十嵐他；原子力学会 1996 春の年会、M-28、p. 632, 1996

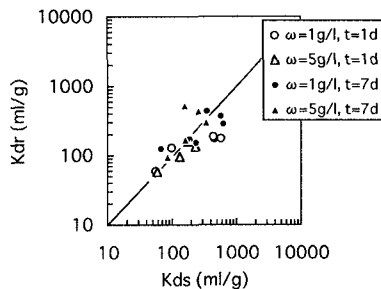


図-4 試料 3 に対する K_{dr} と K_{ds} との関係

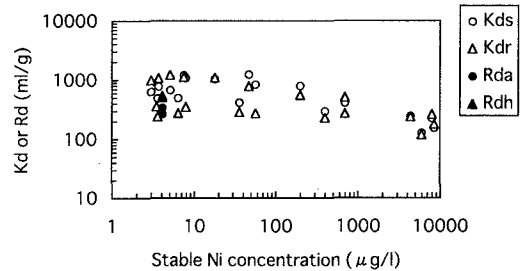


図-1 試料 1 に対する K_d, R_d の安定 Ni 濃度依存性

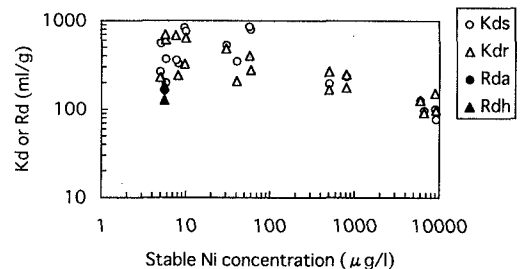


図-2 試料 2 に対する K_d, R_d の安定 Ni 濃度依存性

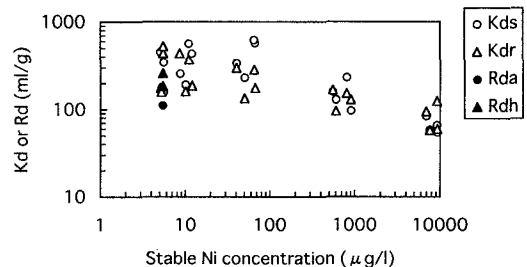


図-3 試料 3 に対する K_d, R_d の安定 Ni 濃度依存性