

二成分の存在するイオン交換体内の放射性荷種の移動

京大工 正会員 井上頼輝, ○京大工 学生会員 森澤真輔

近年我国においては、原子力発電の利用が進み日本原子力産業会議開発計画委員会の報告によれば、昭和60年末に原子力発電による電力は全電力需要量の27%と占める見込みである。あわせて昭和48年から我国においても、日本原子力燃料公社東海製錬所で使用済み燃料の再処理の操業を開始することと予定している。再処理再処理工程においては、燃料形式によっても異なるが、通常は燃料の被覆材を硝酸で溶かすため、そこから出る廃液すなわち再処理廃液は強硝酸酸性で、かつ放射能濃度も異常に高い。したがってこの廃液を希釈して環境に放出することもできず、現在のところ地下タンクに半永久的に貯留することと考えられているにだけである。この強放射能性の再処理廃液が事故により地中に漏れ出した場合、重大な影響が現れることが十分に予想される。すでに主としてアメリカにおいては、放射性廃棄物の地中移行の研究と関連して、放射性物質の地中移動についての研究がなされるなどの成果が得られている。しかし強放射能性の再処理廃液のように水素イオン濃度が異常に高い場合の放射性荷種の地中移動についてはあまり研究が進んでいない様子である。そこで本研究はこの問題にとりくみ水素イオン濃度が異常に高い場合の放射性荷種の地中移動について調べた。同時に、従来の研究が荷種の移動とイオン交換体内における二成分間イオン交換と考えて解析しているのに対し、ここでは現象と多成分間のイオン交換であると考えた Sillén の Frontal analysis の手法⁽¹⁾に従って解析することにした。

Sillén の示した Frontal analysis はイオン交換剤中を通過する溶液およびイオン交換剤内の放射性荷種の濃度変化に曲線(溶出曲線)を関数的に求める手法である。この手法は次の仮定の下に成立する。

- 1) イオン交換剤と溶液との間には、いかなる交換平衡が成立している。
- 2) 溶液の移動方向に物質を移動させる過程は溶液の移動のみである。すなわち物質の拡散は無視する。

Sillén はイオン交換系と注液の全く同じイオン交換剤が無限に長い管の内に一様に充填されている模型を表し、この系を記述するのに二つの変数を用いた。一つはイオン交換層を通過する溶液の量を表す V で、他の一つはイオン交換剤の量を表す X である。この二変数を用いて、管内の物質収支式を書き表すと次式のようなになる。

$$\left(\frac{\partial C_i}{\partial X}\right)_V + \left(\frac{\partial q_i}{\partial V}\right)_X = 0 \quad (1)$$

ここに C_i, q_i は各々第 i 番目の物質の溶液中およびイオン交換剤中での濃度を表す。(1)式が Frontal analysis を行う場合の基礎式である。ところで C_i, q_i は次の条件(2)(3)が満たれるときは $q = C V_{sw} X$ の形の関数と表される。Sillén はこの条件を“ q -Condition”と呼んだ。

$$q=0 (V=0) \text{ のとき } ; C_i, q_i \text{ は全て定数} \quad (2)$$

$$q=\infty (X=0) \text{ のとき } ; C_i, q_i \text{ は全て定数} \quad (3)$$

(1) "On filtration through a sorbent layer." Arkiv för kemi Band 2 nr 35 (1950)
(Lars Gunmar Sillén)

条件(2)は最初($V=0$)もイオンについてイオン交換剤はその間隙水中の濃度 C_i と平衡な濃度 q_i であること、条件(3)は管の入口($x=0$)でイオン交換剤と流入水の濃度は交換平衡の状態にあることを示す。 Q -Condition が成立するときは(1)式が次の様に変形される。

$$\frac{dC_i}{dQ} \left(\frac{C_0}{q_\infty} \frac{dq_i}{dC_i} - Q \right) = 0 \quad (4)$$

この場合 $C_i = \text{Const.}$ または $Q = \frac{C_0}{q_\infty} \frac{dq_i}{dC_i} \quad (5)$

(5)の第一式は液中の希種濃度が不連続に変化することを示し、その位置を与える Q の値 Q_1 は次の式(6)で与えられ、また(5)の第二式は式(7)で与えられる二つの Q の値の間で成立する。

$$Q_1 = \frac{\Delta q_i}{\Delta C_i} \quad (6)$$

$$Q_1 = \frac{C_0}{q_\infty} \left(\frac{dq_i}{dC_i} \right)_{C_i=0}, \quad Q_2 = \frac{C_0}{q_\infty} \left(\frac{dq_i}{dC_i} \right)_{C_i=C_0} \quad (7)$$

(7)式の Q_1, Q_2 は各々交換平衡曲線の原点および $C_i = C_0, q_i = q_\infty$ 点における接線の勾配を示す。図-1に Frontal analysis の手順を表した図を示す。

・水素イオン濃度が高い場合の希種の地中での挙動を調べるために次の実験をした。まずカラムに Amberlite IR-120B 55g を充填し ^{90}Sr を混入した 0.085N- HNO_3 溶液を通過した。別のカラムに砂 300g を充填し、同じく ^{90}Sr を混入した 0.085N- HNO_3 溶液を通過した。砂カラムによる実験より得た流出曲線と Frontal analysis による理論曲線とを図-2に示す。以上の実験より得られる結論および問題点を列挙すると次の様になる。

- 1) Frontal analysis による理論流出曲線は不連続な曲線となる場合があるが、平均希出量の位置は実験値とよく一致しており全体的にみて実験値の傾向をよく表している。
- 2) 本実験では模擬廃液の硝酸濃度を 0.085N としたが実際の再処理廃液ではより高濃度である。したがってより高濃度の硝酸が地中に浸入する場合、硝酸と土砂との相互作用を調べる必要がある。
- 3) 本実験では地中での希種のイオン交換については考えないが、この点と更に基礎的に調べる必要がある。
- 4) Frontal analysis の手法はまだ改良すべき点が多い。たとえば、拡散項、速度項とも考慮する方向で改良していく必要がある。现阶段では放射状希種の地中移動をこの手法を用いて予測するのは危険である。

図-1 Frontal analysis の図解

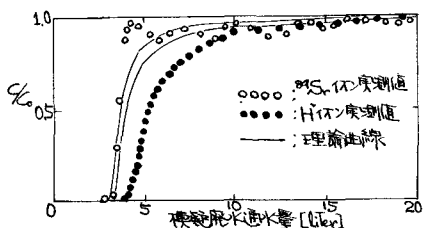
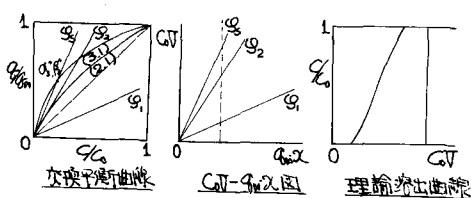


図-2 ^{90}Sr , H-イオン実験値と理論曲線(砂カラム)