

最終処分場浸出水中に存在する Cs の鉱物への吸着特性

岩手大学 学生会員 ○藤沢 康平
岩手大学 正会員 石川 奈緒
岩手大学 正会員 伊藤 歩
岩手大学 正会員 海田 輝之

1. はじめに

2011 年 3 月 11 日の東北地方太平洋沖地震の発生に伴う福島第一原子力発電所の事故により、環境中に大量の放射性物質が放出された。現在までに国内において、東日本を中心とした様々な地点で放射性物質が検出されている。これに伴って、放射性物質を含む廃棄物が最終処分場で処理・処分されることにより、放射性物質が浸出水とともに漏出してしまいう可能性が浮上した。以上のことを背景とし、本研究は最終処分場から環境中への放射性物質の拡散を抑制する隔離層として有効と考えられる鉱物を用いて、バッチ試験や実際の隔離層を想定したカラム試験等を行い、いくつかの条件下における Cs の吸着特性の実験的検討をするものである。

2. 実験方法

2-1 使用材料

バッチ試験に用いた鉱物試料は、ゼオライト(新東北化学工業)、イライト(G・O ネットワークス)の 2 種類である。表-1 に全分解によって得られた各鉱物中の元素濃度と pH を示す。

本研究に用いる浸出水は、いわてクリーンセンターより採取した。表-2 に主な元素濃度を示す。pH は 7.4 であった。また、実験には、孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過したろ液を使用した。

表-1 各鉱物中の元素濃度

元素	ゼオライト	イライト
Al[mg/g]	62	75
Fe[mg/g]	12	16
Ca[mg/g]	15	2.2
K[mg/g]	7.6	26
Sr[mg/g]	0.12	0.07
Cs[mg/g]	13	5.1
pH(1g:100mL)	7.1	7.0

表-2 浸出水元素濃度

Ca[mg/L]	K[mg/L]	Mg[mg/L]	Sr[mg/L]	Cs[$\mu\text{g/L}$]	Rb[$\mu\text{g/L}$]
1554	604	106	8.40	16.6	887

2-2 実験手順

(1)バッチ試験：収着等温線

3 連のバッチ法により収着等温線を求めた。50 mL 容量の遠沈管に固液比が 1 g : 100 mL となるように Cs を加えた浸出水と鉱物を混合した。混合液の Cs の初期濃度は 0.1, 1, 5, 10, 100 mg/L の 5 段階に設定した。振とう機を用いて 120 rpm, 25℃の恒温で 3 日間の振とう後、上澄み液を孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターによりろ過した。ろ液中の Cs 濃度を誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS, Thermo, iCAP Qc)で測定し、鉱物への収着量を求めた。

(2)カラム実験

処分場において隔離層として利用することを想定したカラム系での実験を行った。10 mL 容量のシリンジに用いてゼオライトを 5 g 充填したカラムを作成し、Cs 1 mg/L を含んだ浸出水を流量 1 mL/min で通水した。流出液は継時的に採取し、ICP-MS で Cs 濃度を測定した。

3. 結果及び考察

3-1 バッチ試験(収着等温線)

図-1 は、ゼオライト、イライトに対する Cs の収着等温線である。収着等温線は、ラングミュアモデルには適合しなかったが、フロイントリッヒモデル(式[1])に適合した。表-3 に求めた係数を示す。

$$q_e = K_F C_e^n \quad \dots \text{式}[1]$$

q_e : 収着量[$\mu\text{g/kg}$] C_e : 液相濃度[$\mu\text{g/L}$]

K_F : フロイントリッヒ係数 n : フロイントリッヒ指数

また、 n の値に関してゼオライトはほぼ 1 であるため濃度依存が大きく、イライトは小さいことがいえる。

浸出水について、表-2 に示したように浸出水中の Cs 濃度は 16.6 $\mu\text{g/L}$ であることから図-1、表-3 の収着等温式による浸出水における最大収着量はゼオライトが 18.4 $\mu\text{g/g}$ 、イライトが 3.7 $\mu\text{g/g}$ という結果が得られた。

キーワード：福島原子力発電所の事故・セシウム・鉱物・最終処分場浸出水・カラム試験・収着特性

連絡先：岩手大学（盛岡市上田 4-3-5 TEL019-621-6449）

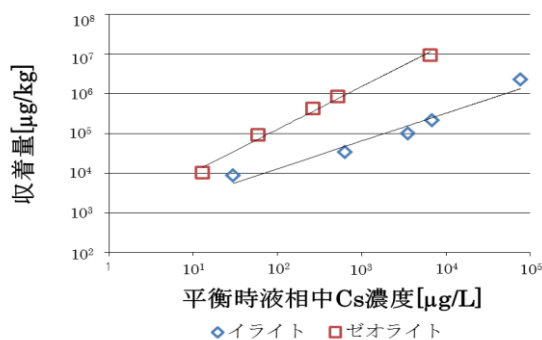


図-1 Csの収着等温線

表-3 フロイントリッヒ収着等温式における係数

	ゼオライト	イライト
K_F : フロイントリッヒ係数 [mL/g]	896	521
n : フロイントリッヒ指数	1.08	0.70
R^2	0.99	0.95

3-2 バッチ試験(元素濃度)

図-2, 3は、ゼオライト、イライトのバッチ試験後におけるCs設定濃度の変化に伴う元素の濃度変化を示したものである。

KやMgは表-2に示すように浸出水中に多量に含まれるが、Csに比べても多量なこともあり、Cs濃度の増大に伴う浸出水元素濃度からの減少の幅に変化は見られなかった。対してRbは、Cs濃度の増加に伴う元素濃度からの減少幅の低下が見られた。これは、Csが特異的に収着されるサイト(Frayed edge site)においてRbがCsと競合していると考えられる。

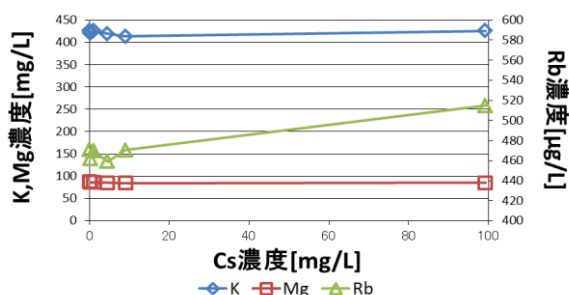


図-2 ゼオライトでの元素濃度変化

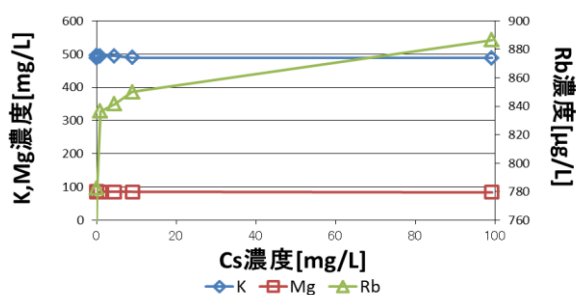


図-3 イライトでの元素濃度変化

3-2 カラム試験

図-4は、カラム試験から得た破過曲線である。縦軸の C/C_0 はカラム通水前の初濃度 C_0 と通水後 C の濃度比を表し、横軸のpore volumeとは、カラム内の全間隙体積で積算流出量を割った値である。初期には値のばらつきが見られたが、243 pore volume以降から安定した破過曲線が得られた。

Cs濃度が破過するまでの約20日間の収着量を算出したところ、2017 $\mu\text{g/g}$ という結果が得られた。一方、バッチ試験により得られたフロイントリッヒ収着等温線で求められる、Cs 1 mg/Lの時の収着量は1498 $\mu\text{g/g}$ であり、カラム試験から求められた収着量と異なっていた。より実際の状態に即した実験系であるカラム試験の結果に対応するバッチ試験の条件を検討する必要がある。

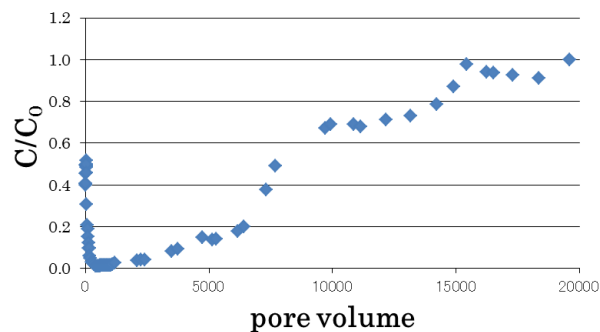


図-4 カラム試験の破過曲線

4. まとめ

本研究では、ゼオライトとイライトのCs収着において収着等温線がフロイントリッヒモデルに適合することを確認した。また、収着後の液相中元素濃度の測定により、溶存量の多いKやMgに変化はなく、比較的低い濃度であるRbがCsとの競合性が見られた。このことにより、ゼオライトおよびイライト中にCsを特異的に収着するFrayed Edge siteでRbとCsが競合することが示唆された。また、バッチ試験とカラム試験から得られたCs収着量は異なっていた。今後は、実際の最終処分場の状態により近いカラム試験での結果を推定できるように、バッチ試験の実験条件を検討する必要がある。

謝辞

浸出水の採取にあたり、いわてクリーンセンターの方々にご協力頂きました。ここに記し謝意を表します。